Störung der γ-Winkelverteilung durch fehlstelleninduzierte Quadrupolwechselwirkung in Metallen

Inaugural - Dissertation

zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von

Christian Abromeit

aus Bergen/Rügen

1976

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41547206_0022

Störung der γ-Winkelverteilung durch fehlstelleninduzierte Quadrupolwechselwirkung in Metallen

Inaugural - Dissertation

zur Erlangung der Doktorwürde
der Freien Universität Berlin
Fachbereich Physik

vorgelegt von

Christian Abromeit

aus Bergen/Rügen

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

1. Referent: Prof. Dr. H. Gabriel

2. Referent: Prof. Dr. F. Forstmann

Tag der mündlichen Prüfung: 26.2.1976

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung 1

2. Die differentiellen und integralen Störfaktoren 3
   2.1. Liouville Darstellung von quantenmechanischen Problemen 3
   2.2. Einfluß der Meßzeit 7
   2.3. Die polykristalline Mittelung 8

3. Die Berechnung des effektiven Evolutionsoperators 9
   3.1. Das stochastische Modell 10
   3.1.1. Der Wertebereich der stochastischen Variablen $\hat{H}(t)$ 10
   3.1.2. Die Übergangswahrscheinlichkeiten 10
   3.1.3. Die a priori Wahrscheinlichkeiten $p_{j\mu}(t)$ 14
   3.1.4. Der gemittelte Evolutionsoperator 17
   3.1.5. Das Eigenwertspektrum von $-i\mathfrak{L}+\mathfrak{W}$ 19
   3.2. Bestimmung und Reduktion der Matrixdimension 21
   3.2.1. Der Umgebungszustand 23
   3.2.2. Weitere Reduktion der Matrixdimension, wenn der Sondenkern ein Inversionszentrum ist 25

4. Näherungsausdrücke für den Evolutionsoperator und dessen Matrixelemente 28
   4.1. Das RPA-Modell (Random Phase Approximation) 28
   4.2. Das Schalen-Sprungmodell 33
   4.3. Asymptotische Lösungen 35

5. Die Berechnung der a priori Wahrscheinlichkeiten $p_j(t)$ 37
   5.1. Das zeitliche Verhalten von $p_j(t)$ 38
   5.2. Die Gleichgewichtswahrscheinlichkeiten p_j^{eq} 42

6. Der Feldgradientenansatz 48
   6.1 Abschirmung einer Punktladung in einem Elektronengas 49
   6.2 Näherungsansatz für die Ladungsdichte $\delta\rho(r)$ 53

7. Berechnete Störfaktoren für ein Leerstellensprungmodell 56
7.1. Auswahl von Gittertypen und Rechenmethoden 56
7.2. Das kubisch raumzentrierte Gitter mit zwei diskreten Schalen (I=1) 58
7.2.1. Der differentielle Störfaktor $G_{22}(t)$ 60
7.2.2. Die integralen Störfaktoren $G_{kk}(\infty)$ und $G_{kk}^{qq}(\infty)$ 64
7.2.3. Näherungslösung für Spinwerte I>1 67
7.3. Das ebene hexagonale Gitter mit zwei diskreten Schalen und einem gittertypischen Feldgradienten $V_q^G \neq 0$ 68
7.3.1. Der differentielle Störfaktor $G_{22}(t)$ 69
7.3.2. Die integralen Störfaktoren $G_{kk}(\infty)$ und $G_{kk}^{qq}(\infty)$ 70
7.4. Das kubisch flächenzentrierte Gitter mit einer diskreten Schale und einem externen Magnetfeld $B \neq 0$ 72
7.4.1. Die differentiellen Störfaktoren $G_{22}^{qq}(t)$ 73
7.4.2. Vergleich mit einem Experiment 77
7.5. Zusammenfassung der Ergebnisse des Kap.7 81

8. Die differentiellen Störfaktoren $G_{22}(t)$ im quasistatischen Grenzfall 82
8.1. Der Grenzfall $\nu=0$ 82
8.2. Vergleich mit einem Experiment 83

9. Zusammenfassung 90

10. Anhang 92

11. Literaturverzeichnis 94

1. Einleitung

Ionenimplantations- und in-beam-Experimente mit Sondenkernen zur Messung der Hyperfeinwechselwirkungen in einem Wirtskristall sind unausweichlich mit Strahlenschäden des Gitters verbunden. So wird auch an einem Sondenkern, der in ein kubisches Gitter substitutionell implantiert worden ist, ein nicht verschwindender elektrischer Feldgradient beobachtet, der auf Strahlenschäden zurückgeführt werden muß [1-3]. Es ist zur Interpretation der Meßergebnisse, wie sie z.B. aus Mößbauer- und PAC/PAD-Experimenten (Perturbed Angular Correlation/Distribution) gewonnen werden, notwendig, die durch das Präparationsexperiment entstandene gestörte Umgebung des Sondenkerns näher zu untersuchen. Die Vielfalt der Defektstrukturen und ihr unterschiedliches Zeitverhalten machen es unmöglich, eine vollständige Theorie der Strahlenschäden mit ihren Auswirkungen auf die experimentellen Ergebnisse zu entwickeln. Man ist darauf angewiesen, sich auf einfache, realistische Modelle zu beschränken.

In den betrachteten Experimenten führt die Probenpräparation zu einer Defektverteilung um den Sondenkern, die sich nicht im thermodynamischen Gleichgewicht befindet. Der sich anschließende Erholungsprozeß aufgrund von Diffusion und Ausheilung der Defekte besteht aus verschiedenen Stufen, die verschiedenen Defekttypen (z.B. Leerstellen, Zwischengitteratomen usw.) zugeordnet werden können [4]. Er wurde hauptsächlich mit makroskopischen Methoden untersucht, jedoch erscheint die Frage wichtig, wie weit kernpyhsikalische Meßmethoden wie Mößbauer- und PAC/PAD-Experimente die makroskopisch gewonnenen Ergebnisse ergänzen können. Ein unter diesem Aspekt ausgewertetes PAD-Experiment von Bertschat et al. [3] zeigt einen deutlichen Zusammenhang beider Untersuchungsmethoden.

Wir nehmen in unserem Modell an, daß ein spezieller Defekttyp in der Umgebung der Sonde überwiegt. Alle anderen seien entweder schon ausgeheilt, oder zu weit von der Sonde entfernt, als daß sie mit dem Sondenkern wechselwirken könnten, und zu unbe-

weglich, um während der Messung in die Nähe des Sondenkerns zu wandern.

In dieser Arbeit wird der Einfluß von diffundierenden Leerstellen auf die Ergebnisse eines PAC/PAD-Experimentes untersucht. Wir verwenden für den aufgrund des Platzwechsels der Leerstellen fluktuierenden Hyperfein-Wechselwirkungsprozeß ein stochastisches Modell und berechnen den Mittelwert des Zeitentwicklungsoperators für die Dichtematrix des Sondenkerns.

Die Arbeit gliedert sich in folgende Teile:
In Kap.2 definieren wir die zentralen Größen, die Kernstörfaktoren, die alle Informationen über die Wechselwirkung des Kernspinsystems mit der Umgebung enthalten. Den stochastischen Prozeß der Leerstellendiffusion in einem diskreten Gitter behandeln wir in Kap.3. Es werden Näherungsmethoden angegeben, die die Auswertungen bedeutend vereinfachen, zum Teil erst möglich machen (Kap.4) Die Frage nach der Präparation zum Anfangszeitpunkt des PAC/PAD-Experimentes wird in Kap.5 untersucht. Für den von Leerstellen hervorgerufenen Feldgradienten am Ort des Sondenkerns wird ein empirischer Ansatz gemacht (Kap.6). Numerische Ergebnisse für verschiedene Gittertypen mit und ohne externem Magnetfeld für integrale und differentielle Messungen sind in Kap.7 zusammengefaßt. Sie werden bezüglich der Näherungsmethoden aus Kap.4 diskutiert und mit einem Experiment verglichen. In Kap.8 wird der Einfluß der Anfangsverteilung der Leerstellen auf die berechneten Störfaktoren untersucht. Die Ergebnisse zeigen gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten.

2. Die differentiellen und integralen Störfaktoren

In einem PAC/PAD-Experiment wird durch eine Kernreaktion oder durch einen γ-Übergang ein isomerer Kernzustand I mit einer Dichtematrix $\rho(t=t_0)$ bevölkert. Der Zustand entwickelt sich unter dem Einfluß äußerer Wechselwirkungen $\hat{H}(t)$ mit einem Evolutionsoperator $\mathcal{G}(t, t_0)$ zu $\rho(t)$ und zerfällt unter Aussendung von γ-Strahlung in den Grundzustand. Die Winkelverteilung der gemessenen γ-Strahlung wird durch [5]

$$W(\vec{k}_f, t, t_0) \sim e^{-(t-t_0)/\tau_N} \mathrm{Tr}\{D\rho(t)\}\,;\; D = \sum_\sigma \varepsilon_\sigma V_{\vec{k}_f\sigma} V^+_{\vec{k}_f\sigma} \qquad (2.1)$$

(τ_N Lebensdauer des isomeren Kernzustandes, $V^+_{\vec{k}_f\sigma}$ Übergangsoperator in den Grundzustand. Die Polarisation bleibt unberücksichtigt) gegeben. Unter Benutzung der Liouville Darstellung läßt sich der Anteil der Präparation $\rho(t=t_0)$ und der Detektion D von der Evolution in einfacher Weise trennen. Das ist nützlich, da der Wechselwirkungsprozeß sich nur auf den Entwicklungsoperator auswirkt.

2.1. Liouville-Darstellung von quantenmechanischen Problemen[+]

Wir fassen die linearen q.m. Operatoren A,B,C eines unitären Raumes U mit den Basisvektoren $\{|n\rangle\}$

$$\langle m|n\rangle = \delta_{m,n} \qquad 1 = \sum_{n=1}^{N} |n\rangle\langle n| \qquad (2.2)$$

[+]Eine ausführliche Beschreibung von quantenmechanischen Problemen in Liouville-Darstellung findet sich bei H.Gabriel und J.Bosse [6]. Wir wiederholen die Ergebnisse nur so weit, wie wir sie für unser Problem benötigen.

als Elemente eines linearen Vektorraumes L (Liouville-Raum) der Dimension N^2 auf. Wir definieren ein Skalarprodukt aus zwei Vektoren $|A) \in L$ und $|B) \in L$ mit

$$(A|B) =_{Df} \overline{Tr}\{A^+ B\} \quad . \tag{2.3}$$

Die sogenannte Standardbasis des Liouville-Raumes wird durch die Vektoren

$$|mn) =_{Df} |m\rangle\langle n|)$$

mit

$$(mn|m'n') = \delta_{mm'}\delta_{nn'}; \quad 1_L = \sum_{mn} |mn)(mn| \tag{2.4}$$

aufgespannt. Eine Zerlegung eines beliebigen Vektors $|A) \in L$ in seine Komponenten lautet demnach

$$|A) = \sum_{mn} |mn)\langle m|A|n\rangle \quad . \tag{2.5}$$

Ein "Superoperator" $\mathcal{S}$ hat die Eigenschaft, die Komponenten eines Vektors $|A)$ in die eines Vektors $|B)$ zu transformieren. Wir schreiben symbolisch

$$|B) = \mathcal{S}\,|A) \tag{2.6}$$

und verwenden den sogenannten Liouville Operator

$$\hat{H}\,|A) =_{Df} |[H,A]) \tag{2.7}$$

und den Superdrehoperator

$$\mathcal{D}(\vec{\omega})|A) =_{Df} |e^{-i\vec{\omega}\cdot\vec{J}} A\, e^{+i\vec{\omega}\cdot\vec{J}}) \tag{2.8}$$

Wichtig für die theoretische Behandlung der Winkelkorrelationsmethode ist die Basis aus irreduziblen Tensoroperatoren $|U_q^{(k)})$. Nach H.Gabriel [7] wird sie aus der Standardbasis durch die unitäre Transformation

$$\left(mn \mid U_q^{(k)}(\Omega)\right) = (-)^{I-m}\,(2k+1)^{1/2}\begin{pmatrix} I & k & I \\ -m & q & n \end{pmatrix} \qquad (2.9)$$

gegeben und hat die Eigenschaften

$$\left(U_q^{(k)}(\Omega) \mid U_{q'}^{(k')}(\Omega)\right) = \delta_{kk'}\,\delta_{qq'}\;;\quad \mathbb{1}_L = \sum_{kq} \mid U_q^{(k)}(\Omega)\rangle\left(U_q^{(k)}(\Omega)\right| \quad . \qquad (2.10)$$

Die Matrixelemente des Superdrehoperators in dieser Basis sind die Drehmatrizen [6]

$$\left(U_q^{(k)}(\Omega) \mid \mathcal{D}(\vec{\omega}) \mid U_{q'}^{(k')}(\Omega)\right) = \delta_{kk'}\, D^{(k)}_{qq'}(\vec{\omega}) \quad . \qquad (2.11)$$

Die zeitliche Entwicklung der Dichtematrix läßt sich in Liouville-Darstellung formal einfach lösen. Die Liouville-von Neumann Gleichung lautet [8] ($\hbar=1$)

$$\frac{d}{dt}\,\mid \varrho(t)) = -i\,\hat{H}(t)\mid \varrho(t)) \qquad (2.12)$$

und hat die Lösung [9]

$$\mid \varrho(t)) = \Omega_{t_0}^{t}(-i\hat{H}(\tau))\mid \varrho(t_0)) \quad . \qquad (2.13)$$

Mit Gl. (2.3), (2.10) und (2.13) läßt sich die Winkelverteilungsfunktion (2.1) zu

$$W(\vec{k}_f,t,t_0) \sim e^{-(t-t_0)/\tau_w} \sum_{kq\,k'q'} \left(D(\vec{k}_f)\mid U_q^{(k)}(\Omega)\right)\left(U_q^{(k)}(\Omega)\right|\Omega_{t_0}^{t}(-i\hat{H})\mid U_{q'}^{(k')}(\Omega)\rangle\left(U_{q'}^{(k')}(\Omega)\mid \varrho(t_0)\right) \qquad (2.14)$$

umschreiben. Die Matrixelemente des Evolutionsoperators sind die zeitdifferentiellen Störfaktoren

$$G^{qq'}_{kk'}(t,t_0) = \left(U_q^{(k)}(\Omega)\mid \Omega_{t_0}^{t}(-i\hat{H})\mid U_{q'}^{(k')}(\Omega)\right) \qquad (2.15a)$$

und in zeitintegraler Form

$$G^{qq'}_{kk'}(\infty,t_0) = \frac{1}{\tau_w}\int_{t_0}^{\infty} G^{qq'}_{kk'}(t,t_0)\, e^{-(t-t_0)/\tau_w}\,dt \quad , \qquad (2.15b)$$

die wir im folgenden behandeln werden. Die Strahlungsparameter $D_q^{(k)*}(\vec{k}_s) = (D(\vec{k}_s) | U_q^{(k)}(I))$ und die Orientierungs- oder Anregungsparameter $g_q^{(k)}(t_0) = (U_q^{(k)}(I) | g(t_0))$ werden durch das spezielle Experiment und die gewählte Geometrie vorgegeben und sind nicht von der Wechselwirkung abhängig.

Im Falle statischer magnetischer und quadrupolarer Wechselwirkung lautet der Liouville-Operator

$$\hat{H} = \hat{H}_M(k=1) + \hat{H}_Q(k=2) = \sum_{k=1,2} \sum_{Q=-k}^{+k} (-)^Q \hat{T}_Q^{(k)} V_{-Q}^{(k)} \qquad (2.16)$$

Seine Matrixelemente bezüglich der irreduziblen Tensoroperatorenbasis (2.9) erhalten wir mit

$$(U_q^{(k)}(I) | \hat{H}_K | U_{q'}^{(k')}(I)) = R_K \sum_Q (-)^Q c_{Qq'q}^{kk'k} (I) V_{-Q}^{(k)} \qquad (2.17)$$

in der Notation von H.Gabriel [7]. Die Strukturkoeffizienten $c_{Qq'q}^{Kk'k}(I)$ und das reduzierte Matrixelement R_K sind dort in Gl. (A24) und (39b) definiert. Wir verwenden folgende Definition der sphärischen Komponenten des Magnetfeldes (K=1)

$$V_0^{(1)} = B_z \qquad V_{\pm 1}^{(1)} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (B_x \pm i B_y) \qquad (2.18)$$

bzw. des elektrischen Feldgradiententensors (K=2)

$$V_0^{(2)} = V_{zz} = \phi_{zz} - \tfrac{1}{3}\Delta\phi \; ; \; V_{\pm 1}^{(2)} = \mp \frac{2}{\sqrt{6}} (\phi_{xz} \pm \phi_{yz}) ; \; V_{\pm 2}^{(2)} = \frac{1}{\sqrt{6}} (\phi_{xx} - \phi_{yy} \pm 2i\phi_{xy}) . \qquad (2.19)$$

Für ein konstantes Magnetfeld B_z mit der Larmorfrequenz $\omega_L = -g\mu_N B_z$ lauten die Matrixelemente

$$(U_q^{(k)}(I) | \hat{H}_M | U_{q'}^{(k')}(I)) = q\,\omega_L\, \delta_{kk'}\, \delta_{qq'} \qquad (2.20)$$

und für einen axialsymmetrischen Feldgradienten ϕ_{zz} entsprechend

$$(mn | \hat{H}_Q | m'n') = \underbrace{3(m^2 - n^2)\,\omega_Q}_{q\omega_0 \,,\; q = 0, \pm 1, \ldots}\, \delta_{mm'}\, \delta_{nn'} \qquad (2.21)$$

mit der Quadrupolfrequenz $\omega_Q = -\frac{eQ \cdot V_o^{(2)}}{4I(2I-1)}$,

die zusammen mit der Transformationsmatrix (2.9) zu den bei Steffen und Frauenfelder [10] genannten Ausdrücken führen.

Für beliebig zeitabhängige Wechselwirkungen ist die Berechnung der Matrixelemente des Evolutionsoperators schwierig, wenn nicht gar unmöglich. Bei stochastischen Wechselwirkungen jedoch ist unter Umständen eine Auswertung möglich. Ein effektiver Evolutionsoperator läßt sich berechnen durch Mittelung über alle möglichen zeitlich fluktuierenden Wechselwirkungsprozesse

$$g(t,t_o) = \left\langle \Omega_{t_o}^{t}(-i\hat{H}(\tau)) \right\rangle \quad . \tag{2.22}$$

Im Detail werden wir darauf in Kap.3 eingehen.

2.2 Einfluß der Meßzeit

Um eine gute Statistik der Meßdaten zu erhalten, werden lange Meßzeiten benötigt. Ändern sich während der Meßdauer $T_{ab}=t_a-t_b$ nicht nur die Wechselwirkungen, sondern auch die zur Mittelung nach (2.22) benötigten Parameter, ist das Meßergebnis ein zusätzlich über die Meßzeit gemittelter Störfaktor

$$\overline{G_{kk'}^{qq'}}(t) = \frac{1}{T_{ab}} \int_{t_b}^{t_a} G_{kk'}^{qq'}(t,t_o)\, dt_o \tag{2.23}$$

Wir haben in (2.23) angenommen, daß die Mittelungsparameter für jeden Meßzeitpunkt t_o mit gleichem Gewicht in die Mittelung eingehen. Für das in dieser Arbeit behandelte Problem muß die Mittelung über die Meßzeit T_{ab} immer dann geschehen, wenn sich in der Umgebung des implantierten Sondenkerns die Parameter der Sprungdiffusion wie Leerstellenkonzentration und Sprungfrequenz während T_{ab} ändern. Gl. (2.23) entspricht in diesem Fall einer Mittelung über einen Erholungsprozeß.

2.3 Die polykristalline Mittelung

In fast allen Experimenten werden polykristalline Proben verwendet. Wir erhalten die Störfaktoren durch Mittelung über alle Lagen der Monokristalle. Unterscheiden sie sich untereinander nur hinsichtlich der Orientierung im Raum, d.h. sind die Wechselwirkungs- und dynamischen Prozesse innerhalb eines Monokristalls nicht von der äußeren Orientierung abhängig und sind weiterhin alle Orientierungen gleich wahrscheinlich, kann die Ensemble-Mittelung bei genügend hoher Zahl von Einzelkristallen durch eine Winkelmittelung ersetzt werden. Die genannten Voraussetzungen sind nicht selbstverständlich. Implantations- und in-beam-Experimente rufen häufig anisotrope Konzentrationsgradienten hervor [11], so daß Vorzugsrichtungen auftreten können. Äußere Magnetfelder zerstören ebenfalls die räumliche Isotropie. Es ist von Fall zu Fall zu untersuchen, wie weit eine Winkelmittelung die Ergebnisse verfälscht.

Die differentiellen Störfaktoren transformieren sich bei Drehung um Winkel $\vec{\omega}$ mit

$$G^{qq'\,R}_{kk'}(t,t_0) = \left(U^{(k)}_q(I) \,|\, \mathcal{D}(\vec{\omega})\, \mathcal{G}(t,t_0)\, \mathcal{D}^{-1}(\vec{\omega}) \,|\, U^{(k')}_{q'}(I)\right)$$
$$= \sum_{q_1 q_2} D^{(k)}_{q q_1}(\vec{\omega})\, G^{k k'}_{q_1 q_2}(t,t_0)\, D^{(k')*}_{q' q_2}(\vec{\omega}) \quad , \qquad (2.24)$$

so daß die Winkelmittelung wegen

$$\frac{1}{8\pi^2} \int d\vec{\omega}\; D^{(k)}_{q q_1}(\vec{\omega})\, D^{(k')*}_{q' q_2}(\vec{\omega}) = \frac{1}{2k+1}\, \delta_{kk'} \delta_{qq'} \delta_{q_1 q_2} \qquad (2.25)$$

zu

$$G^{qq'}_{kk'}(t,t_0) = \delta_{kk'} \delta_{qq'} G_{kk}(t,t_0) \;;\; G_{kk}(t,t_0) = \frac{1}{2k+1} \sum_q G^{qq}_{kk}(t,t_0) \qquad (2.26)$$

führt, wie es für eine polykristalline Probe mit statischer Wechselwirkung [10] zu erwarten ist. Man beachte jedoch, daß als Voraussetzung für Gl. (2.26)

$$\mathcal{D}(\vec{\omega})\, \mathcal{G}(t,t_0)\, \mathcal{D}^{-1}(\vec{\omega}) = \text{unabhängig von } \vec{\omega} \qquad (2.27)$$

gelten muß.

3. Die Berechnung des effektiven Evolutionsoperators

Punktdefekte diffundieren in Kristallen sprungförmig, z.B. Leerstellen von einem Gitterplatz zu einem anderen. Die Sprungdauer ist sehr kurz gegenüber der mittleren Verweilzeit auf einem Gitterplatz. Der Diffusionsprozeß wird durch die Sprungwahrscheinlichkeit für einen Übergang zwischen Gitterpunkten gekennzeichnet. Sie hängt im allgemeinen von allen früheren Sprüngen und vom Ausgangs- und Zielpunkt des betrachteten Einzelsprungs ab. Vernachlässigt man den Einfluß des vorangegangenen Diffusionsweges auf die Sprungwahrscheinlichkeit eines Einzelsprunges (korrelationsfreie Diffusion), kann die Diffusion durch einen Markoff-Prozeß beschrieben werden. Man spricht von einer "Random-Walk" Diffusion, wenn die Sprungwahrscheinlichkeiten zu den Zielpunkten unabhängig vom Ausgangspunkt werden. Ein Sondenatom jedoch, das mit dem Defekt einen Bindungszustand eingeht oder sich von den Wirtsatomen unterscheidet, verhindert die freie "Random-Walk" Diffusion einer Leerstelle in der nächsten Nachbarschaft des Sondenatoms (Nahbereich). Für eine dem Sondenkern direkt benachbarte Leerstelle sind nicht alle Sprungrichtungen gleich wahrscheinlich, wie dies für eine weit vom Sondenkern entfernte Leerstelle der Fall ist. Das behinderte Sprungverhalten muß in einer theoretische Beschreibung der aufgrund der Diffusion der Leerstelle zeitlich-fluktuierenden quadrupolaren Wechselwirkung mit dem Sondenkern berücksichtigt werden, da gerade im Nahbereich der von der Leerstelle erzeugte elektrische Feldgradient besonders groß ist.

Im folgenden leiten wir einen Ausdruck für den über die fluktuierenden Wechselwirkungen gemittelten Evolutionsoperator $\bar{U}_d(t_1,t_o)$ ab und erläutern ihn am Beispiel der differentiellen und integralen Störfaktoren eines PAC/PAD Experiments. Es sei jedoch darauf hingewiesen, daß der hier betrachtete physikalische Prozeß und die Methode der Behandlung nichts mit PAC/PAD als Nachweisverfahren zu tun haben, sondern z.B. auch für Mößbauer- oder kernmagnetische Resonanzexperimente verwendet werden können.

3.1 Das stochastische Modell

3.1.1 Der Wertebereich der stochastischen Variablen $\hat{H}(t)$

Die Wechselwirkungs-Liouville-Operatoren $\hat{H}_{j\alpha}$ werden unterschieden bezüglich ihres Betrages j und ihrer Quantisierungsachse α. Eine Leerstelle erzeugt am Ort $\vec{r}_{j\alpha}$ einen elektrischen Feldgradienten am Ort eines Sondenkernes $\vec{r}=0$. Der Index α numeriert dann die verschiedenen Gitterplätze durch, die sich in einem festen Abstand $|\vec{r}_{j\alpha}|$ vom Sondenkern in der sogenannten j-ten Schale für eine vorgegebene Gitterstruktur befinden. Wenn der Sondenkern Inversionszentrum ist, werden die Gitterpunkte $-\vec{r}_{j\alpha}$ mit $\vec{r}_{j\bar{\alpha}}$ bezeichnet. Jedem Feldgradienten ist eindeutig ein Liouville-Operator $\hat{H}_{j\alpha}$ zugeordnet. Der stochastische Prozeß der Einzelleerstellendiffusion, gekennzeichnet durch die stochastische Ortsvariable $\vec{r}(t)=\{\vec{r}_{j\alpha}, j\alpha = \text{alle Gitterpunkte}\}$ läßt sich auf den der fluktuierenden quantenmechanischen Wechselwirkungen, gekennzeichnet durch $\hat{H}(t)=\{\hat{H}_{j\alpha}, j\alpha = \text{alle Gitterpunkte}\}$, direkt übertragen.

3.1.2. Die Übergangswahrscheinlichkeiten

Wir setzen voraus, daß der stochastische Prozeß markoffsch ist. Er wird eindeutig beschrieben durch die Angabe der bedingten Wahrscheinlichkeit $P(j\alpha(t_2)|l\beta(t_1))$ für das Eintreten von $\hat{H}_{j\alpha}$ zur Zeit t_2 unter der Voraussetzung, daß $\hat{H}_{l\beta}$ zur Zeit t_1 wirkte. Zur weiteren Vereinfachung verwenden wir eine Matrixschreibweise. Wir fassen die bedingten Wahrscheinlichkeiten als Elemente einer Wahrscheinlichkeitsmatrix

$$[j\alpha|P(t_2,t_1)|l\beta] =_{Df} P(j\alpha(t_2)|l\beta(t_1)) \qquad (3.1)$$

auf. Die Einführung der sogenannten "Stochastischen Zustände" erleichtert auch die Interpretation aller folgenden Ausdrücke,

da sie ganz analog zur Quantenmechanik aufgefaßt werden können. Man beachte jedoch, daß die derart definierten stochastischen Zustände allein keinen linearen Vektorraum bilden.

Für $P(t_2,t_1)$ gilt die Chapman-Kolmogoroff-Gleichung [12]

$$t_2 > t_1 > t_0 \qquad P(t_2,t_0) = P(t_2,t_1)\,P(t_1,t_0) \tag{3.2}$$

und die Kolmogoroff Dgl.

$$\frac{\partial}{\partial t} P(t,\tau) = W(t)\,P(t,\tau) \tag{3.3}$$

mit der Anfangsbedingung $P(\tau,\tau)=1$. Die Matrixelemente von $W(t)$ sind die Übergangswahrscheinlichkeiten pro Zeiteinheit für einen Übergang von $|l\beta]$ nach $|j\alpha]$. Die Lösung der Dgl. (3.3) ist der Matrizant von W [9]

$$P(t,\tau) = \Omega_{\tau}^{t}\,(W(\tau')) \qquad . \tag{3.4}$$

Eine wichtige Eigenschaft sind die Spaltensummenbeziehungen

$$\sum_{j\alpha} [j\alpha|\, P(t,\tau)\,|l\beta] = 1 \qquad , \tag{3.5a}$$

bzw.

$$\sum_{j\alpha} [j\alpha|\, W(\tau')\,|l\beta] = 0 \qquad . \tag{3.5b}$$

Da die Matrixelemente von $P(t,\tau)$ per def. immer zwischen Null und Eins liegen müssen, sind die Lösungen von (3.3) nur dann stabil, wenn die Spaltensummenbeziehungen erfüllt sind [13]. Besonders für die Anwendung auf physikalische Probleme müssen sie beachtet werden, wie wir bei der Untersuchung der Eigenwerte in Kap. 3.1.5. sehen werden.

Für einen homogenen Markoff-Prozeß ist die Übergangsmatrix W zeitunabhängig, da $P(t_2,t_1)$ nur von der Zeitdifferenz $t=t_2-t_1$ abhängt. Anstelle von (3.2) und (3.4) gelten jetzt

$$P(t) = P(t-\tau)\,P(\tau) \tag{3.6a}$$

$$P(t) = \exp\{Wt\} \tag{3.6b}$$

Wie sieht die Matrix W für die Einzelleerstellendiffusion aus? Die Diffusion erfolgt sprungweise von Platz zu Platz. Die Anzahl n der Sprünge in der Zeit t sei im betrachteten Zeitintervall Poisson-verteilt $W_n = \frac{(\nu t)^n}{n!} e^{-\nu t}$. ν ist die totale Sprungfrequenz für unkorrelierte Leerstellensprünge in einem Gitter. Ihre Temperaturabhängigkeit wird durch ein Arrhenius-Gesetz [4]

$$\nu = \nu_0 \exp\{-E_M/kT\} \qquad (3.7)$$

gegeben. (E_M Leerstellen-Wanderungsenergie, $\nu_0 \approx 10^{13}\ s^{-1}$).

Die Leerstellendiffusion in einem diskreten Gitter beschreiben wir durch eine Markoffsche Kette mit der Markoffmatrix M_1 [12]. Die Matrixelemente $[j\alpha|M_1|1\beta]$ sind die Wahrscheinlichkeiten für einen direkten Sprung von Platz $|1\beta]$ nach $[j\alpha]$ und werden durch die Gitterstruktur festgelegt. Man erfaßt damit jedoch keine Korrelationen aufeinander folgender Sprünge [14], da M_1 nur Anfangs- und Endpunkt der Diffusion festlegt, nicht aber frühere Sprünge berücksichtigt. Das veränderte Diffusionsverhalten in der nächsten Nachbarschaft der Sonde wird durch entsprechend gewählte Übergangswahrscheinlichkeiten berücksichtigt. Während für die freie Leerstellendiffusion die Diagonalmatrixelemente $[j\kappa|M_1|j\kappa] = 0$ per def. verschwinden, ist das im Nahbereich der Sonde u.U. nicht der Fall. So kann dort zum Beispiel durch eine Sondenatom-Leerstellenbindung die Sprungrate deutlich verringert werden. Da jedoch durch die Wahl der Poissonverteilung alle Zeitvorgänge in Einheiten $1/\nu$ betrachtet werden, entspricht das einem Verbleiben der Leerstelle auf ihrem Platz (Diagonalelement).

Den gesuchten Ausdruck für P(t) erhalten wir durch wiederholte Einzelleerstellensprünge. Es ergibt sich

$$P(t) = \sum_{n=0}^{\infty} W_n(t) M_n = \exp\{\nu t(M_1 - E)\} \qquad (3.8a)$$

mit $$M_n = M_1^n \quad (M_0 = E \text{ Einheitsmatrix}) \qquad (3.8b)$$

Wahrscheinlichkeitsmatrix für einen Übergang in genau n Sprüngen, so daß aus dem Vergleich mit (3.6b)

$$[j\alpha \mid W \mid l\beta] = \nu \left\{ [j\alpha \mid M_1 \mid l\beta] - \delta_{j\alpha,\, l\beta} \right\} \qquad (3.9)$$

geschlossen werden kann.

Die Bestimmung der Übergangsmatrixelemente $[j\alpha|M_1|1\beta]$ muß für jeden Gittertyp getrennt erfolgen. Wir machen folgende Annahmen:

a) Sprünge erfolgen nur zwischen nächstbenachbarten Plätzen.
b) Die Bildung eines Leerstellen-Sondenkern-Komplexes mit Bindungsenergie E_B (vergl. Abb.3.1)führe zu einer um $b = \exp(-E_B/kT)$ verringerten Sprungrate ν für das Verlassen der ersten Schale.
c) Es sei ein Austauschsprung Sondenkern-Leerstelle mit der Wahrscheinlichkeit p_I erlaubt.

Die Berücksichtigung weiterer Abweichungen von der freien Leerstellendiffusion (z.B. $\Delta E \neq 0$ in Abb.3.1) kann dementsprechend erfolgen.

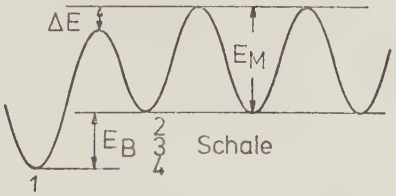


Abb. 3.1 Potentialverlauf für eine Leerstelle nahe einem substitutionell implantierten Sondenkerns (schematisch)
E_M: Wanderungsenergie
E_B: Bindungsenergie
ΔE: Änderung der Sattelpunktsenergie

Die Matrixelemente für Sprünge zu nächstbenachbarten Plätzen (z Anzahl nächster Nachbarn) lauten

$$[j\alpha \mid M_1 \mid l\beta] = \frac{1}{z} \qquad l > 1 \qquad (3.10a)$$

$$[j\alpha \mid M_1 \mid 1\beta] = \frac{1-p_I}{z-1} \exp\{-E_B/kT\} = a\,b \qquad j > 1 \qquad (3.10b)$$

$$[1\alpha \mid M_1 \mid 1\beta] = \frac{1-p_I}{z-1} = a \qquad (3.10c)$$

und sind sonst $[j\alpha|M|1\beta] = 0$
außer für einen Platzwechsel Sondenkern-Leerstelle

$$[1\alpha \mid M_1 \mid 1\bar{\alpha}] = p_I \qquad (3.10d)$$

Die Diagonalelemente sind nach (3.5b)

$$[j\alpha \mid M_1 \mid j\alpha] = 1 - \sum_{l\beta \neq j\alpha} [l\beta \mid M_1 \mid j\alpha] \qquad (3.11)$$

und im allgemeinen für $j>1 = 0$.

In Abb. 3.2 werden für ein ebenes hexagonales Gitter die verschiedenen Sprungmöglichkeiten a)-d) gezeigt. Die Bedeutung des Zustandes $|u]$ wird später erläutert. Die Matrix M_1 in Abb. 3.3 hat die in (3.10) genannten Matrixelemente.

3.1.3 Die a priori Wahrscheinlichkeiten $p_{j\alpha}(t)$

Zusätzlich zur Festlegung von $\hat{H}(t)$ und $P(t)$ muß für die Berechnung von Mittelwerten die Anfangsverteilung auf die stochastischen Zustände zum Zeitpunkt $t=t_o$ bekannt sein. Sie wird beschrieben durch die Angabe der a priori Wahrscheinlichkeiten $p_{j\alpha}(t_o)$. Man muß unterscheiden, ob die Anfangsverteilung $p_{j\alpha}(t_o)$ direkt durch den Implantationsprozeß vorgegeben wird oder sich daraus durch einen sich daran anschließenden Leerstellendiffusionsprozeß entwickelt hat. Während im ersten Fall die Anfangs-

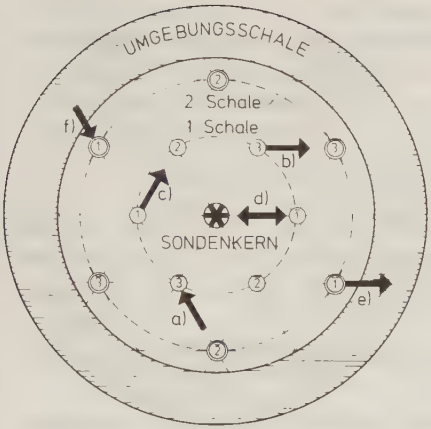


Abb. 3.2
Platz- und Sprungklassifikation für ein ebenes, hexagonales Gitter zur Bestimmung der Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix M_1 nach Gl. (3.10a-d)

		1. Schale			2. Schale				1. Schale			2. Schale			
		1	2	3	1	2	3	u	$\bar{1}$	$\bar{2}$	$\bar{3}$	$\bar{1}$	$\bar{2}$	$\bar{3}$	$\bar{u}$
1. Schale	1	Λ	a	0	1/6	0	0	c	p_I	0	0	0	0	1/6	0
	2	a	Λ	a	1/6	1/6	0	c	0	p_I	0	0	0	0	0
	3	0	a	Λ	0	1/6	1/6	c	a	0	p_I	0	0	0	0
2. Schale	1	ab	ab	0	0	0	0	4c	0	0	0	0	0	0	0
	2	0	ab	ab	0	0	0	4c	0	0	0	0	0	0	0
	3	0	0	ab	0	0	0	3c	ab	0	0	0	0	0	c
	u	ab	ab	ab	2/3	2/3	1/3	Λ_u	0	0	0	2/3	2/3	1/3	d
1. Schale	$\bar{1}$	p_I	0	a	0	0	1/6	0	Λ	a	0	1/6	0	0	c
	$\bar{2}$	0	p_I	0	0	0	0	0	a	Λ	a	1/6	1/6	0	c
	3	a	0	p_I	0	0	0	0	0	a	Λ	0	1/6	1/6	c
2. Schale	$\bar{1}$	0	0	0	0	0	0	0	ab	ab	0	0	0	0	4c
	$\bar{2}$	0	0	0	0	0	0	0	0	ab	ab	0	0	0	4c
	3	ab	0	0	0	0	0	c	0	0	ab	0	0	0	3c
	$\bar{u}$	0	0	0	0	0	1/3	d	ab	ab	ab	2/3	2/3	1/3	$\Lambda_{\bar{u}}$

$$a = (1 - p_I)/5 \; ; \; b = \exp(-E_B/kT) \; ; \; \Lambda = 3a(1-b)$$

$$\Lambda_{\bar{u}} = 1 - 15c - d$$

Abb. 3.3 Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix M_1 für ein ebenes, hexagonales Gitter nach Abb. 3.2

verteilung experimentell oder aus einem theoretischen Modell des Präparationsvorgangs bekannt sein muß, kann man im zweiten Fall das Zeitverhalten von $p_{j\alpha}(t)$ ganz analog zu Kap. 3.1.2. behandeln. Innerhalb des dort geschilderten Modells entwickelt sich eine Anfangsverteilung $p_{j\alpha}(t=0)$ mittels der Kolmogoroff-Gleichung

$$\frac{d}{dt} p_{j\alpha}(t) = \sum_{l\beta} [j\alpha | \nu (M_1 - E) | l\beta] p_{l\beta}(t) \qquad (3.12)$$

mit der Lösung

$$p_{j\alpha}(t) = \sum_{l\beta} [j\alpha | \exp\{\nu t (M_1 - E)\} | l\beta] p_{l\beta}(t=0) \qquad (3.13)$$

Die stationäre Lösung $\frac{d}{dt} p_{j\alpha}(t) = 0$ entspricht dem thermischen Gleichgewichtszustand [12]

$$p_{j\alpha}^{eq} = \lim_{t\to\infty} p_{j\alpha}(t) \quad \text{mit} \quad \sum_{j\alpha} p_{j\alpha}^{eq} = 1 \qquad (3.14)$$

und kann aus dem Prinzip des detaillierten Gleichgewichts

$$[j\alpha | M_1 | l\beta] p_{l\beta}^{eq} = [l\beta | M_1 | j\alpha] p_{j\alpha}^{eq} \qquad (3.15)$$

bestimmt werden.

Die zeitliche Entwicklung zerfällt in die extremen Bereiche:

a) $\nu t \ll 1$

Die Zeit ist zu kurz, bzw. die Sprungfrequenz ist zu klein, als daß sich eine beliebig vorgegebene Anfangsverteilung ändern kann.

b) $\nu t \gg 1$

Es hat sich durch viele Sprungprozesse eine Gleichgewichtsverteilung p_j^{eq} eingestellt.

Im Übergangsbereich $\nu t \approx 1$ muß man mit den Lösungen von (3.13) arbeiten. Wir werden die verschiedenen Bereiche im Kap. 5 näher untersuchen.

3.1.4. Der gemittelte Evolutionsoperator

Der Mittelwert einer stochastischen Variablen $\hat{H}(t)$ zur Zeit t_1 wird nach der Wahrscheinlichkeitstheorie (siehe z.B. [12]) mit den in Kap. 3.1.1. bis 3.1.3. verwendeten Bezeichnungen durch

$$\langle \hat{H}(t) \rangle \equiv \langle \hat{H}(t_1) \rangle = \sum_{j\alpha} \hat{H}_{j\alpha} \rho_{j\alpha}(t_1) \tag{3.16}$$

gegeben. Unter Anwendung von (3.13) (Verschiebung des Anfangszeitpunktes) und (3.4) (konstanter Wertevorrat von $\hat{H}(t)$ im betrachteten Zeitintervall (t_0, t_1)) läßt sich der obige Mittelwert in Matrixform

$$\langle \hat{H}(t_1) \rangle = \sum_{j\alpha, l\beta, s\gamma} [j\alpha | P(t_1,t_1) | l\beta] \hat{H}_{l\beta} [l\beta | P(t_1,t_0) | s\gamma] \rho_{s\gamma}(t_0) \tag{3.17}$$

umschreiben. Vorausgesetzt wird dabei, daß sich $p_{j\alpha}(t_1)$ aus $p_{s\gamma}(t_0)$ mittels eines Diffusionsprozesses entwickelt hat. $p_{s\gamma}(t_0)$ kann allerdings eine beliebige Anfangsverteilung sein. Mit der Diagonalmatrix

$$[j\alpha | \mathcal{H} | l\beta] \stackrel{\text{Df}}{=} \hat{H}_{j\alpha} \delta_{j\alpha, l\beta} \tag{3.18}$$

und den Definitionen (vergl. Heisenberg-Zeitabhängigkeit von Operatoren in der Quantenmechanik)

$$\mathcal{H}[t_1,t_0] \stackrel{\text{Df}}{=} \Omega_{t_1}^{t_0}(\mathcal{W}(\tau)) \mathcal{H} \Omega_{t_0}^{t_1}(\mathcal{W}(\tau)) \; ; \; \mathcal{W} \stackrel{\text{Df}}{=} \mathbb{1}_L \otimes W \tag{3.19}$$

wird (3.17) in die einfache Form

$$\langle \hat{H}(t_1) \rangle = \sum_{j\alpha, l\beta} [j\alpha | \mathcal{H}[t_1,t_0] | l\beta] \rho_{l\beta}(t_0) \tag{3.20}$$

übergeführt.

Die Mittelung über Produkte stochastischer Variabler kann für Markoffprozesse in gleicher Weise ($t_1 > t_2 > \ldots > t_n$)

$$\langle \hat{H}(t_1)\hat{H}(t_2)\ \ldots\ \hat{H}(t_n)\rangle = \sum_{j\alpha,l\beta} [j\alpha|\mathcal{H}[t_1,t_2]\mathcal{H}[t_2,t_3]\ldots\mathcal{H}[t_{n-1},t_n]|l\beta]\cdot \cdot[-i\beta(t_0) \tag{3.21}$$

umgeformt werden.

Für die Berechnung des gemittelten Evolutionsoperators mit einem stochastischen Liouville-Operator $\hat{H}(t)$ benutzen wir die Matrizantenentwicklung [9]

$$\Omega_{t_0}^{t_1}(-i\mathcal{H}[\tau,t_0]) = 1 - i\int_{t_0}^{t_1} d\tau\ \mathcal{H}[\tau,t_0]\,\Omega_{t_0}^{\tau}(-i\mathcal{H}[\tau,t_0]) \tag{3.22}$$

Ein ggf. vorhandener nicht stochastischer Anteil $\hat{H}_0$ im Liouville Operator wird durch Addition zum stochastischen Anteil $\hat{H}_0 + \hat{H}_{j\alpha} \Rightarrow \hat{H}'_{j\alpha}$ berücksichtigt.

Der stochastische Mittelwert (2.22)

$$\mathcal{G}(t_1,t_0) = \langle \Omega_{t_0}^{t_1}(-i\hat{H}(\tau))\rangle = \sum_{n=0}^{\infty}(-)^n\int_{t_0}^{t_1}d\tau_1\ldots\int_{t_0}^{\tau_{n-1}}d\tau_n\langle\hat{H}(\tau_1)\ldots\hat{H}(\tau_n)\rangle \tag{3.23}$$

lautet mit (3.21)

$$\mathcal{G}(t_1,t_0) = \sum_{j\alpha,l\beta}[j\alpha|\,\Omega_{t_0}^{t_1}(-i\mathcal{H}[\tau,t_0])\,|l\beta]\,\rho_{l\beta}(t_0) \tag{3.24}$$

ganz analog zu (3.20) und kann mit der Spaltensummenbeziehung (3.5a) und (3.22) zu

$$\mathcal{G}(t_1,t_0) = \sum_{j\alpha,l\beta}[j\alpha|\,\mathcal{U}(t_1,t_0)|l\beta]\,\rho_{l\beta}(t_0) \tag{3.25}$$

umgeformt werden. $\mathcal{U}(t_1,t_0)$ ist die Lösung der Integralgleichung

$$\mathcal{U}(t_1,t_0) = \Omega_{t_0}^{t_1}(\mathcal{W}(\tau)) - i\int_{t_0}^{t_1}d\tau\,\Omega_{\tau}^{t_1}(\mathcal{W}(\tau))\,\mathcal{H}\,\mathcal{U}(\tau,t_0) \tag{3.26}$$

$$\mathcal{U}(t_1,t_0) = \Omega_{t_0}^{t_1}(-i\mathcal{H}+\mathcal{W}(\tau)) \quad . \tag{3.27}$$

Beschränken wir uns auf homogene Markoffprozesse, ist $\mathcal{W}(\tau)$ zeitunabhängig. Der gemittelte Evolutionsoperator

$$\mathcal{G}(t,t_o) = \sum_{j\alpha,\ell\beta} [j\alpha \,|\, \exp\{(-i\mathcal{H}+\mathcal{W})(t-t_o)\} \,|\, \ell\beta]\, \rho_{\ell\beta}(t_o) \qquad (3.28)$$

hat die von Blume [15] angegebene Form. Man beachte, daß $\mathcal{G}(t_1,t_o)$ noch ein quantenmechanischer Operator ist, während $\mathcal{W}$ c-Zahl Größen enthält entsprechend der Leerstellendiffusion in einem diskreten Gitter und ansonsten dem $\mathbb{1}_L$-Operator im Liouville-Raum proportional ist. Die Laplace-Transformierte von $\mathcal{G}(t_1,t_o)$, aus dem nach (2.15b) die integralen Störfaktoren sich ergeben, läßt sich wegen der zeitlichen Unabhängigkeit von $\mathcal{H}$ und $\mathcal{W}$ sofort bilden:

$$\mathcal{G}(p,t_o) = \sum_{j\alpha,\ell\beta} [j\alpha \,|\, \frac{1}{p+i\mathcal{H}-\mathcal{W}} \,|\, \ell\beta]\, \rho_{\ell\beta}(t_o) \qquad (3.29)$$

Ehe jedoch für verschiedene Gittertypen die Matrixelemente des Evolutionsoperators $\mathcal{G}(t_1,t_o)$ und seiner Laplace-Transformierten berechnet werden, soll das allgemeine Verhalten untersucht werden.

3.1.5. Das Eigenwertspektrum von $-i\mathcal{H}+\mathcal{W}$

Das Dämpfungsverhalten des gemittelten Evolutionsoperators $\mathcal{G}(t_1,t_o)$ wird durch den Realteil der Eigenwerte der Matrix $(-i\mathcal{H}+\mathcal{W})$ bestimmt. Aus physikalischen Gründen dürfen die Realteile nicht größer als Null sein.

Wir prüfen dieses analog zu Winkler [16] mit Hilfe eines Theorems von Lyaponow [13]:

$\mathcal{S}$ ist eine Stabilitätsmatrix, wenn zwei positiv definite, hermitesche Matrizen $\mathcal{A}$ und $\mathcal{B}$ existieren, für die

$$\mathcal{S}^+\mathcal{A} + \mathcal{A}\mathcal{S} = -\mathcal{B} \qquad (3.30)$$

gilt.

(Erläuterung: Eine Matrix $\mathcal{S}$ ist eine Stabilitätsmatrix, wenn ihre Eigenwerte alle einen negativen Realteil haben).

Da für $(-i\mathcal{H}+\mathcal{W})$ der Eigenwert mit einem Realteil gleich Null zugelassen ist, untersuchen wir, ob die Matrix

$$\mathcal{S}^{+} = +i\mathcal{H} - \mathcal{W}^{+} - \epsilon\, t \qquad t = 1_L \otimes 1_S \;;\; \epsilon > 0 \tag{3.31}$$

eine Stabilitätsmatrix ist.

Wir wählen die hermitesche, positiv definite Matrix

$$\mathcal{A} = 1_L \otimes A_S \qquad [j\alpha \,|\, A_S \,|\, l\beta] = p^{eq}_{j\alpha}\, \delta_{j\alpha,l\beta} \tag{3.32}$$

mit den Eigenschaften

$$[\mathcal{H}, \mathcal{A}] = 0 \;;\; \mathcal{A} = \mathcal{A}^{+} \;;\; \mathcal{W}\mathcal{A} = \mathcal{A}\mathcal{W}^{+} , \tag{3.33}$$

wobei die letzte aus der Bedingung (3.15) folgt.

Mit der Hermitezität von $\mathcal{H}$ ergibt sich

$$2\,(\epsilon \cdot 1_S - W)\, A_S = B_S \;; \qquad \mathcal{B} = 1_L \otimes B_S \tag{3.34}$$

Die Matrix B_S ist symmetrisch. Da nach (3.9) $W = \nu(M_1 - 1_S)$ gilt und die Eigenwerte von M_1 alle betragsmäßig kleiner oder gleich Eins sind, hat die Matrix B_S nur positive Eigenwerte. B_S ist für $\epsilon>0$ positiv definit, da A_S diagonal und positiv definit ist. Damit ist $\mathcal{S}^{+}$ und ebenfalls $\mathcal{S}$ eine Stabilitätsmatrix. Im Grenzfall $\epsilon=0$ kann der Realteil maximal gleich Null werden, jedoch nicht positiv. $(-i\mathcal{H}+\mathcal{W})$ hat die erforderliche Eigenschaft.

3.2. Bestimmung und Reduktion der Matrixdimension

Da in unserem betrachteten Fall die Dimension des quantenmechanischen Zustandsraums durch den Kernspin I des isomeren Zustandes des Sondenkerns gekennzeichnet ist, erhält man die Dimension der Matrix $-i\mathfrak{L}+\mathfrak{W}$ durch das Produkt aus $D_L=(2I+1)^2$ mit D_S, der Dimension der stochastischen Matrizen. Letztere wird festgelegt durch die Anzahl der im Diffusionsvolumen enthaltenen Gitterpunkte. Für ein Einzelleerstellensprungmodell muß es je nach Konzentration der Leerstellen so gewählt werden, daß es im Mittel nur eine Leerstelle enthält. Gleichzeitige Anwesenheit von zwei und mehr Leerstellen führt zu zusätzlichen Wechselwirkungen, die im Wertebereich unseres $\hat{H}(\tau)$ nicht berücksichtigt sind. Ihre Hinzunahme würde die Matrixdimension um ein Vielfaches erhöhen, kann jedoch ohne Schwierigkeit durch entsprechende Änderung der Matrix M_1 erfolgen.

Nehmen wir an, daß sich N_V Leerstellen auf N_L Gitterplätzen verteilen und die Anzahl der Sondenkerne N_I klein $N_V \gg N_I$ ist. Wir finden dann im Mittel auf

$$n_V = \frac{N_L}{N_V} = \frac{1}{c_V} \tag{3.35}$$

Gitterplätzen eine Leerstelle. Für kleine Einzelleerstellenkonzentrationen $c_V \ll 1$ (d.h. $N_V \ll N_L$), wie sie physikalisch auftreten, erhalten wir eine genügend hohe Zahl von Gitterplätzen, die die Anwendung des Einzelleerstellenmodells erlaubt. Die Dimension D_S ist durch

$$D_S < n_V \tag{3.36}$$

beschränkt. Die endliche Dimension D_S führt sofort zu einer Verletzung der Spaltensummenbedingung von (3.5b). Bei Aufstellung der Matrix M_1 in (3.10) und (3.11) wurde die Anwesenheit von mehr als einer Leerstelle im Gitter nicht berücksichtigt. Es bieten sich zwei Auswege an:

a) Die Leerstelle kann den Raumbereich mit n_v Gitterplätzen nicht verlassen, da sie an der Bereichswand total reflektiert wird. Eine Leerstelle außerhalb des Raumbereichs kann nicht nach innen diffundieren.

b) Der Raumbereich wird aufgeteilt (Abb. 3.2) in einen inneren Bereich diskreter Struktur mit n_d Gitterpunkten und einen äußeren, sog. Umgebungsbereich, in dem alle restlichen Gitterpunkte n_v-n_d enthalten sind. Leerstellen, die den diskreten Bereich verlassen haben (Sprungtyp e)), werden nicht mehr bezüglich ihrer speziellen Lage im Umgebungsbereich unterschieden. Leerstellensprünge in den inneren Bereich (Sprungtyp f)) können von jedem äußeren Gitterplatz erfolgen. Ihre Sprungraten sind abhängig von der mittleren Leerstellenkonzentration c_V.

Die in b) vorgeschlagene Lösung hat gegenüber a) den Vorteil, daß einzelne Leerstellen aus einem Raumbereich in einen anderen wandern können. Zusätzlich erreicht man eine Verringerung der Matrixdimension D_S, die für die numerische Behandlung des Problems erforderlich ist. Man muß allerdings bedenken, daß mit ihr auch eine Veränderung der Werte von $\hat{H}(\tau)$ verbunden ist, da alle Liouville-Operatoren für Leerstellen im Umgebungsbereich gleich sein müssen. Innerhalb unseres Modells ist das nur möglich, wenn die von ihnen erzeugten elektrischen Feldgradienten alle hinreichend klein sind, so daß ihr Einfluß auf den betreffenden Sondenkern vernachlässigt werden kann. In Kap. 3.2.1. werden wir die Matrixelemente von M_1 in Abhängigkeit von der Leerstellenkonzentration für den Lösungsansatz b) bestimmen, und in Kap. 3.2.2. werden Symmetrieeigenschaften von $\mathcal{H}$ und $\mathcal{W}$ ausgenützt, um die Dimension D_S weiter zu reduzieren.

3.2.1. Der Umgebungszustand

Wir fassen alle Gitterpunkte des Außenbereiches zu einer sogenannten Umgebungsschale zusammen. Ist der Sondenkern ein Inversionszentrum (s. Abb. 3.2), worauf wir uns später zur Vereinfachung der numerischen Rechnung beschränken wollen, so ist aufgrund der Definition des Umgebungsbereichs mit $|u]$ auch $|\bar{u}]$ ein äquivalenter stochastischer Zustand mit der Eigenschaft $\hat{H}_u = \hat{H}_{\bar{u}} = 0$. Die Übergangswahrscheinlichkeiten für einen Sprung aus dem inneren Bereich in die Umgebungsschalen ergeben sich aus der Summe aller Sprungwahrscheinlichkeiten

$$[u|M_1|j\alpha] = \sum_{l\beta > n_d} [l\beta|M_1|j\alpha] \quad . \tag{3.37}$$

Die Spaltensummenbedingung (3.5b) ist erfüllt, wie auch an der zu Abb. 3.2 zugehörigen Matrix M_1 in Abb. 3.3 ersichtlich ist. Die Bestimmung der Sprungraten aus dem äußeren in den inneren Bereich erfordert zusätzliche Überlegungen. Die Wahl eines diskreten Raumbereiches mit einem beliebigen $n_d < n_V$ darf an den Gleichgewichts-a priori Wahrscheinlichkeiten $p_{j\alpha}^{eq}$ des Innenbereichs nichts ändern. Es gilt die Beziehung für ein Gleichgewicht (3.15) auch bezüglich des Umgebungszustandes $|u]$

$$[j\alpha|M_1|u]\, p_u^{eq} = [u|M_1|j\alpha]\, p_{j\alpha}^{eq} \tag{3.38}$$

mit der Gleichgewichtswahrscheinlichkeit p_u^{eq} für das Antreffen der Leerstelle im Umgebungszustand $|u]$.

Zusammen mit (3.15) für Zustände des inneren Bereiches sind die Verhältnisse der Rücksprungraten festgelegt. Wir erhalten

$$\frac{[j\alpha|M_1|u]}{[l\beta|M_1|u]} = \frac{[u|M_1|j\alpha]}{[u|M_1|l\beta]} \cdot \frac{[j\alpha|M_1|l\beta]}{[l\beta|M_1|j\alpha]} \tag{3.39}$$

für $[\ell\beta|M_1|j\alpha] \neq 0$, andernfalls muß (3.15) wiederholt angewendet werden. Die Diagonalmatrixelemente $[u|M_1|u]$ und $[\bar{u}|M|\bar{u}]$ werden durch die Spaltensummenbedingung (3.5b) bestimmt. Die Sprungraten d von $|u]$ nach $|\bar{u}]$ bzw. $|\bar{u}]$ nach $|u]$ sind als gleich angenommen worden und können ohne Änderung der Ergebnisse d=0 gesetzt werden. Das Ergebnis (3.39) erhalten wir auch, wenn wir das Verhältnis aus der Anzahl der nächsten Nachbarn $n_{j\alpha}$ des jeweiligen Rücksprungplatzes $|j\alpha]$ in der Umgebung $|u]$ bilden

$$\frac{[j\alpha|M_1|u]}{[\ell\beta|M_1|u]} = \frac{n_{j\alpha}}{n_{\ell\beta}} \qquad \ell_j > 1 \quad , \tag{3.40}$$

ein physikalisch einsichtiger Ausdruck. Zur Aufstellung der Matrix M_1 in Abb.3.3 wurde deshalb

$$[j\alpha|M_1|u] = c \cdot n_{j\alpha} \tag{3.41}$$

gesetzt. Die Proportionalitätskonstante c ist die einzige noch nicht festgelegte Konstante. Sie wird aus der Leerstellenkonzentration berechnet.

Unter der Voraussetzung, daß sich eine Leerstelle auf einem der n_v Gitterplätze befindet, gilt

$$\sum_{\alpha}^{z} p_{1\alpha}^{eq} + \sum_{\substack{j\beta \\ j>1}}^{n_d} p_{j\beta}^{eq} + \sum_{\substack{\ell\gamma \\ \ell \neq n_d}}^{n_v} p_{\ell\gamma}^{eq} = 1 \quad . \tag{3.42}$$

Da nach (3.10a) und (3.10b) mit (3.15)

$$\frac{p_{j\alpha}^{eq}}{p_{j\beta}^{eq}} = \frac{1}{z_{ab}} \qquad \text{und} \qquad p_{j\beta}^{eq} = p_{\ell\gamma}^{eq} \qquad j,\ell > 1 \tag{3.43}$$

gilt, ergibt sich mit (3.42) , j>1

$$c = \frac{[u|M_1|j\alpha]}{n_{j\alpha}} \cdot \frac{2\, c_v}{1 - c_v\, n_d} \tag{3.44}$$

als Rücksprungrate mit $c>0$, da $c_V>0$ und $n_d<n_v$ ist. Geben wir die Anzahl der diskreten Gitterpunkte fest vor und variieren c_V, so darf c_V nicht größer als $1/n_d$ werden. Für das Beispiel des ebenen hexagonalen Gitters, Abb. 3.2, ist $c_V<\frac{1}{12}$.

3.2.2. Weitere Reduktion der Matrixdimension, wenn der Sondenkern ein Inversionszentrum ist

Die Dimension der Matrix $-i\mathfrak{L}+\mathfrak{W}$ ist trotz der in 3.2.1. reduzierten Form noch so groß, daß in fast allen physikalisch interessierenden Problemen die Auswertung von (3.28) allein aus Rechnerkapazitätsgründen nicht gelingt. Eine weitere Reduktion ist erforderlich und möglich, wenn der elektrische Feldgradient, den die Leerstelle am Ort $|j\vec{a}]$ am Kernort $\vec{r}=0$ hervorruft, gleich dem von einer Leerstelle am Ort $|j\vec{a}]$ ist. Die Eigenschaft

$$V_q^{(2)}(\vec{r}) = V_q^{(2)}(-\vec{r}) \qquad (3.45)$$

für die elektrischen Feldgradienten am Inversionszentrum führt zur Gleichheit der zugeordneten Liouville Operatoren $\hat{H}_{j\vec{a}}=\hat{H}_{j-\vec{a}}$. Es liegt also eine Form von Entartung bezüglich der stochastischen Zustände vor. Für die Mittelwertbildung in (3.28) wird die Übergangsmatrix $\mathfrak{W}$ bezüglich der stochastischen Variablen $\hat{H}(\cdot)$ benötigt (vgl. 3.1.1.). Wir erhalten sie aus M_1 in der folgenden Weise:

Für ein Einzelleerstellensprungmodell können M_1 und $\mathfrak{L}$ durch Zeilen-und Spaltenvertauschungen in die symmetrische Form

$$M_1 = \begin{pmatrix} A & B \\ B & A \end{pmatrix} \qquad \mathfrak{L} = \begin{pmatrix} \tilde{\mathfrak{L}} & 0 \\ 0 & \tilde{\mathfrak{L}} \end{pmatrix} \qquad (3.46)$$

gebracht werden, wobei A und B quadratische Matrizen gleicher Dimension sind.

Anwendung von

$$T = T^{-1} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} E & E \\ E & -E \end{pmatrix} \tag{3.47}$$

transformiert M_1

$$M_1^{(T)} = T\, M_1\, T^{-1} = \begin{pmatrix} \tilde{M}_1 = A+B & 0 \\ 0 & \tilde{\tilde{M}}_1 = A-B \end{pmatrix} \tag{3.48}$$

in Blockstruktur, läßt jedoch $\mathfrak{X}$ unverändert. Die Matrix $\tilde{M}_1$ erfüllt alle für eine Markoffmatrix geforderten Bedingungen.
Der effektive Evolutionsoperator aus (3.28) läßt sich mit Hilfe der Transformation (3.47) und unter Voraussetzung von $p_{j\alpha}=p_{j\bar{\alpha}}$ zu

$$\mathcal{G}(t,t_0) = \sum_{j\alpha,\,l\beta} [j\alpha \,|\, \exp\{(-i\tilde{\mathfrak{X}}+\tilde{\mathfrak{W}})(t-t_0)\} \,|\, l\beta]\; \tilde{p}_{l\beta}(t_0) \tag{3.49}$$

bzw.

$$\mathcal{G}(\rho,t_0) = \sum_{j\alpha,\,l\beta} [j\alpha \,|\, \frac{1}{\rho+i\tilde{\mathfrak{X}}-\tilde{\mathfrak{W}}} \,|\, l\beta]\; \tilde{p}_{l\beta}(t_0) \tag{3.50}$$

umformen, wobei die Matrixdimension von $\tilde{\mathfrak{W}} = \mathbb{1}_L \otimes \nu(A+B-E)$ halb so groß ist wie von $\mathfrak{W}$.

Wie die Matrix $\tilde{M}_1=A+B$ für das Beispiel des ebenen hexagonalen Gitters aussieht, zeigt Abb. 3.4.

		1. Schale			2. Schale			
		1	2	3	1	2	3	u
1. Schale	1	Λ	a	a	1/6	0	1/6	c
	2	a	Λ	a	1/6	1/6	0	c
	3	a	a	Λ	0	1/6	1/6	c
2. Schale	1	ab	ab	0	0	0	0	4c
	2	0	ab	ab	0	0	0	4c
	3	ab	0	ab	0	0	0	4c
	u	ab	ab	ab	2/3	2/3	2/3	Λ_u

$a = (1 - p_1)/5$; $b = \exp(-E_B/kT)$

$\Lambda = 1 - 2a - 3ab$; $\Lambda_u = 1 - 15c$

$$3c = c_V (1 - 12 c_V)^{-1}$$

Abb. 3.4 Reduzierte Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1 = A+B$ nach Gl. (3.48) für ein ebenes, hexagonales Gitter nach Abb. 3.2

Man beachte, daß der in Abb. 3.3 auftretende Faktor d nicht mehr erscheint. Die a priori Wahrscheinlichkeiten $\tilde{p}_{j\alpha}$ ergeben sich aus der Summe der Einzelwahrscheinlichkeiten $\tilde{p}_{j\alpha} = 2p_{j\alpha}$.

Weitere Reduktion der stochastischen Zustände ist ohne Änderung des physikalischen Prozesses nicht möglich.

4. Näherungsausdrücke für den Evolutionsoperator und dessen Matrixelemente

Das Verhalten des Evolutionsoperators $\mathcal{J}(t_1,t_o)$ wird in diesem Kapitel im Rahmen von Näherungen studiert, die in extremen Bereichen der Relaxation $\nu=0$ oder $\nu=\infty$ den exakten Ausdruck für $\mathcal{J}(t_1,t_o)$ liefern. Wie in Kap. 7 bei der Berechnung der nuklearen Störfaktoren aus $\mathcal{J}(t_1,t_o)$ gezeigt wird, ist in manchen Fällen der Unterschied zwischen Näherungslösung und exakter Behandlung auch außerhalb der extremen Bereiche derart gering, daß auf eine aufwendige Rechnung verzichtet werden kann. Für hohe Matrixdimensionen kann eine numerische Behandlung wegen mangelnder Rechnerkapazität nicht erfolgen, so daß man auf solche Verfahren angewiesen ist.

Eine andere Näherung an P(t) durch Übergang zu einer Darstellung durch Fourierintegrale, wie sie Knauer [17], Dattagupta [18] und Sholl [19] und Cavelius [20] angeben, wird im Anhang diskutiert.

4.1 RPA-Modell (Random Phase Approximation)

Die in Kap. 3.1.2. abgeleitete Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix M_1 berücksichtigt bei jedem einzelnen Sprung sowohl Ausgangs- wie auch Zielplatz des Sprunges. Sie ist unabhängig von der Sprungfrequenz ν. Wir versuchen, die Matrix M_1 durch eine Matrix M_∞ anzunähern, so daß die Mittelung über die stochastischen Zustände ausgeführt werden kann. In Sprungprozessen, die sehr schnell gegenüber den Wechselwirkungsprozessen $\nu>>\omega_Q(j\alpha)$, $j\alpha=1, \ldots n$ verlaufen, kann für Zeiten $\nu t>>1$ die bedingte Wahrscheinlichkeit P(t) nach Gl. (3.8a) wegen der großen Sprungzahl n mit

$$P(t) \approx \sum_{n\gg 0}^{\infty} W_n(t) M_1^n \qquad (4.1)$$

angenähert werden, wobei der Anteil der Poissonverteilung für kleine n vernachlässigt wird. Nach dem Ergodensatz für Markoffprozesse gilt [12]

$$\lim_{n\to\infty} M_1^n = M_\infty \quad \text{mit} \quad [j\alpha|M_\infty|l\beta] = p_{j\alpha}^{eq} \quad . \tag{4.2}$$

Wir können für große n die Matrix M_1^n durch M_∞ in Gl. (4.1) ersetzen. Unter Beachtung von $M_1^n = M_n$ erhalten wir die Übergangsmatrix

$$\mathcal{W} \approx \mathcal{W}^{RPA} = \nu\,(M_\infty - E) \otimes \mathbb{1}_L \;;\; M_\infty = M_1^{RPA} \tag{4.3}$$

In den Arbeiten von Anderson [21], Kubo [22] und Dattagupta und Blume [23] wird diese Näherung auch "Random Phase Approximation" genannt. Ihre Bedeutung ist aus folgender Betrachtung zu ersehen.
Wegen der Vertauschbarkeit von M_1 und M_∞ mit $[M_1, M_\infty] = 0$ haben beide Matrizen den gleichen Satz von Eigenvektoren. Die Eigenwerte jedoch sind unterschiedlich. Für M_∞ sind sie bekannt und haben die Werte $\lambda_1 = 1$, $\lambda_j = 0$ für alle $j > 1$, während für M_1 nur der Eigenwert $\lambda_1 = 1$ bekannt, die anderen jedoch im allgemeinen ungleich Null und untereinander verschieden sind. Das Dämpfungsverhalten wird im exakten Fall durch eine größere Anzahl von Dämpfungskonstanten beschrieben.

Mit Gl. (4.3) können wir tatsächlich den stochastischen Mittelwert in Gl. (3.28) ausführen. Wir erhalten für den gemittelten Evolutionsoperator die Integralgleichung

$$\mathcal{G}^{RPA}(t,t_o) = e^{-\nu(t-t_o)}\,\mathcal{G}^{stat}(t,t_o) + \nu\int_{t_o}^{t} d\tau\, e^{-\nu(t-\tau)}\,\mathcal{G}^{stat}(t-\tau,eq)\,\mathcal{G}^{RPA}(\tau,t_o) \tag{4.4a}$$

mit

$$\mathcal{G}^{stat}(t,t_o) = \sum_{j\alpha} e^{-i\hat{H}_{j\alpha}(t-t_o)}\,p_{j\alpha}(t_o) \;;\; \mathcal{G}^{stat}(t,eq) = \sum_{j\alpha} e^{-i\hat{H}_{j\alpha}t}\,p_{j\alpha}^{eq} \quad . \tag{4.4b}$$

und für dessen Laplace-Transformierte analog zu Blume [24]

$$G^{RPA}(p,t_o) = \frac{G^{stat}(p+\gamma,t_o)}{1_L - \gamma G^{stat}(p+\gamma,eq)} \qquad (4.5a)$$

mit

$$G^{stat}(p\,t_o) = \sum_{j\alpha} \frac{P_{j\alpha}(t_o)}{p + \imath \hat{H}_{j\alpha}} \quad ; \quad G^{stat}(p,eq) = \sum \frac{P^{eq}_{j\alpha}}{p + \imath \hat{H}_{j\alpha}} \quad . \qquad (4.5b)$$

Die Gleichungen sind jedoch weiterhin Operatorgleichungen, die nur für spezielle Wechselwirkungen, wie wir sie im folgenden untersuchen werden, zu einfach auswertbaren Ausdrücken führen. Für die Berechnung von integralen Störfaktoren ist die Reduzierung der Matrixdimension jedoch äußerst hilfreich, da die Inversenbildung von Matrizen der Dimension des Liouville-Raumes auch für höhere Spin-Werte vom Rechenaufwand her unproblematisch ist.

Die innerhalb der RPA möglichen Spezialfälle sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Matrix $p^{eq}_{j\alpha}$	stat. WW K	stochastische WW K	Betrag j	Richtung α	Experiment	Ref.	
1/n	-	2	1	3,4	TDPAC	Gerdau, Winkler	[25]
	-	1	2	1	TDPAC	Gerdau et. al.	[26]
	-	1	1	2	MOES	Blume	[15]
p^{eq}_j/n_j	-	1,2	∞	∞	TDPAC	Bosch, Spehl	[27]
	-	1	1	∞	IPAC	Blume, Scherer	[24]
beliebig	-	1,2	1	∞	TDPAC, IPAC	Dattagupta, Blume	[23]

Tabelle 1 : Beispiele für R.P.A. : $[j\alpha i\, M_1^{RPA}\, l\beta] = p^{eq}_{j\alpha}$

In der vierten Spalte sind Beispiele der physikalischen Anwendung angegeben. Der von Winkler und Gerdau [25] untersuchte Fall der Richtungsfluktuation des elektrischen Feldgradienten erforderte die vollständige Auswertung von (3.28), während in allen anderen Fällen spezielle Eigenschaften der Wechselwirkung wie Isotropie oder die Konstanz der Quantisierungsachse es erlaubten, die Operatoren $\mathcal{G}$ in Gl. (4.4) durch ihre quantenmechanischen Matrixelemente zu ersetzen.

Die Anwendung der RPA auf solch ein Modell, in dem alle Liouville-Operatoren vertauschen $[\hat{H}_{j\alpha}, \hat{H}_{1\beta}]=0$, führt zu einfachen Gleichungen für die Matrixelemente des gemittelten Evolutionsoperators. Mit der gemeinsamen Eigenbasis

$$\hat{H}_{j\alpha}\,|n) = \omega_n(j\alpha)\,|n) \tag{4.6}$$

für alle $(j\alpha)$ folgt aus Gl. (4.4)

$$G^{RPA}_{nn}(t,t_0) = e^{-\nu(t-t_0)}\,G^{stat}_{nn}(t,t_0) + \nu\int_{t_0}^{t} d\tau\, e^{-\nu(t-\tau)}\,G^{stat}_{nn}(t-\tau,eq)\,G^{RPA}_{nn}(\tau,t_0) \tag{4.7a}$$

und die Laplace Transformierte (3.39)

$$G^{RPA}_{nn}(p,t_0) = \frac{G^{stat}_{nn}(p+\nu,t_0)}{1-\nu\,G^{stat}_{nn}(p+\nu,eq)} \tag{4.7b}$$

mit den statischen Störfaktoren

$$G^{stat}_{nn}(t,t_0) = \sum_{j\alpha} e^{-i\omega_n(j\alpha)(t-t_0)}\,P_{j\alpha}(t_0) \quad ; \quad G^{stat}_{nn}(t,eq) = \sum_{j\alpha} e^{-i\omega_n(j\alpha)(t-t_0)}\,P^{eq}_{j\alpha} \tag{4.8a}$$

$$G^{stat}_{nn}(p,t_0) = \sum_{j\alpha} \frac{P_{j\alpha}(t_0)}{p+i\omega_n(j\alpha)} \quad ; \quad G^{stat}_{nn}(p,eq) = \sum \frac{P^{eq}_{j\alpha}}{p+i\omega_n(j\alpha)} \,. \tag{4.8b}$$

Die gleichen Formeln lassen sich auch gewinnen, wenn man isotrope Wechselwirkung annimmt. Die Matrixelemente der Liouville-Operatoren sind in diesem Fall unabhängig von der Richtungsquantenzahl q und diagonal in k. Wir erhalten die Ergebnisse von Blume und Scherer [24] , die den Einfluß einer fluktuierenden isotropen Hyperfeinwechselwirkung $\vec{I}\cdot\vec{S}$ auf ein Kernspinsystem I berechnen.

Ist die Wechselwirkung $\hat{H}_{j\alpha}$ nicht isotrop, aber treten kontinuierlich alle Werte von α auf, derart daß gilt (α beliebig, β fest)

$$\hat{H}_j = \mathcal{D}(\alpha\to\beta)\hat{H}_{j\alpha}\mathcal{D}^{-1}(\alpha\to\beta) \qquad (4.9)$$

($\mathcal{D}$ sind die in Kap.2 definierten Drehoperatoren), sind die Gln. (4.7) und (4.8) unter einer zusätzlichen Voraussetzung ebenfalls gültig. Die Übergangsmatrix M_1^{RPA} und $p_{j\alpha}(t_o)$ muß innerhalb der RPA unabhängig von α sein. Die Vollständigkeitsrelation der Drehmatrizen führt dann sofort zu den differentiellen Störfaktoren G_{kk}^{poly} für polykristalline Proben nach Steffen und Frauenfelder [10], und es folgen Gln. (4.7a) und (4.7b) mit n=k und

$$G_{kk}^{stat}(t,t_o)=\sum_j G_{kk}^{poly}(\omega_o(j)\,t-t_o)\,p_j(t_o)\;;\quad G_{kk}^{stat}(t,eq)=\sum_j G_{kk}^{poly}(\omega_o(j),t)\,p_j^{eq} \qquad (4.10a)$$

$$G_{kk}^{poly}(\omega_o(j),t)=\sum_N s_{kN}\cos(N\omega_o(j)t)\quad . \qquad (4.10b)$$

Für den integralen Störfaktor gilt entsprechend

$$G_{kk}^{stat}(p,t_o)=\sum G_{kk}^{poly}(\omega_o(j),p)\,p_j(t_o)\;;\quad G_{kk}^{stat}(p,eq)=\sum G_{kk}^{poly}(\omega_o(j),p)\,p_j^{eq} \qquad (4.11a)$$

$$G_{kk}^{poly}(\omega_o(j),p)=\sum_N s_{kN}\frac{p}{p^2+(N\omega_o(j))^2}\quad . \qquad (4.11b)$$

Dieser Grenzfall ist deshalb für das von uns behandelte Problem wichtig, da für viele Gitter die Anzahl der möglichen Werte von α für gleiches j sehr groß ist. Dies entspricht der Anzahl der Leerstellenplätze in festem Abstand von dem Sondenkern. Wie groß die Abweichung von der exakten Rechnung ist, werden wir in Kap.7 untersuchen.

4.2. Das Schalen-Sprungmodell

Zur Untersuchung von Fluktuationen im Betrage des elektrischen Feldgradienten verwenden wir das "Schalen-Sprungmodell". Wir nehmen an, daß

1) die Liouvilleoperatoren $\hat{H}_{j\alpha} = \hat{H}_j$
2) die Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $[j\alpha|M_1|l\beta]$
3) die a priori Wahrscheinlichkeiten $p_{j\alpha}(t_o)$

unabhängig von der Lage α auf der Schale j sind. Der gemittelte Evolutionsoperator läßt sich mit den Annahmen 1)-3) zu

$$\mathcal{G}^s(t,t_o) = \sum_{jl} [j|\exp\{(-i\tilde{\mathcal{H}} + \tilde{\mathcal{W}}^s)(t-t_o)\}|l]\, \tilde{\rho}_l(t_o) \qquad (4.12)$$

umschreiben mit den reduzierten Ausdrücken

$$[j|\tilde{\mathcal{H}}|l] = \hat{H}_j\, \delta_{jl} \qquad (4.13a)$$

$$[j|\tilde{\mathcal{W}}^s|l] = 1_l \otimes \nu \{ \tfrac{1}{n_l} \sum_{\alpha\beta} [j\alpha|M_1|l\beta] - \delta_{jl} \} \qquad (4.13b)$$

$$\tilde{p}_j(t_o) = n_j\, p_{j\alpha}(t_o) \quad . \qquad (4.13c)$$

In dem betrachteten Einzelleerstellenmodell entspricht das einem Schalen-Sprungmodell, bei dem sich der Feldgradiententensor nur im Betrag, nicht in der Richtung ändert. Die Verringerung der Di-

mension vereinfacht sehr die Berechnung des gemittelten Evolutionsoperators, jedoch führt sie zu großen Fehlern bei hohen Sprungfrequenzen.

Im Grenzfall $\nu=0$ und für $p_{j\alpha} = \frac{\tilde{p}_j}{n_j}$ erhalten wir die exakte Lösung für eine polykristalline Probe. Mit

$$\hat{H}_j = \mathcal{D}(\vec{\alpha})\, \hat{H}_{j\alpha}\, \mathcal{D}^{-1}(\vec{\alpha}) \tag{4.14}$$

und

$$\sum_{\alpha} \sum_{q} D^{(k)}_{qq'}(\vec{\alpha})\, D^{(k)*}_{qq''}(\vec{\alpha}) = n_j\, \delta_{q'q''} \tag{4.15}$$

folgen aus (3.28) mit (2.11) und (2.26) die differentiellen Störfaktoren

$$G_{kk}(t,t_0) = \frac{1}{2k+1} \sum_{q} \sum_{j} \left(U^{(k)}_q(\mathrm{I}) \left| \exp\{-i\hat{H}_j(t-t_0)\} \right| U^{(k)}_q(\mathrm{II})\right) \tilde{p}_j(t_0) \,. \tag{4.16}$$

Sie stimmen mit den differentiellen Störfaktoren für eine polykristalline Probe, die aus Gl. (4.12) für $\nu=0$ durch Bilden der Matrixelemente nach Gl. (2.26) gewonnen wurden, überein.

Wie sich die Matrix M_1 für ein hexagonales Gitter ändert, ist aus Abb. 4.1 erkennbar. Die Matrix $\tilde{M}^S_1$ enthält nur zwei Schalen, deren Übergangsmatrixelemente nach Gl. (4.13b) gebildet wurden.

	1. Schale	2. Schale	u
1. Schale	Λ	1/3	3c
2. Schale	2 ab	Λ	12 c
u	ab	2/3	Λ_u

$\Lambda = 1 - 3ab$; $\Lambda_u = 1 - 15c$

Abb. 4.1
Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}^S_1$ für ein Schalen-Sprungmodell im ebenen hexagonalen Gitter

4.3 Asymptotische Lösungen

Für die Grenzfälle starker $\nu >> \omega_Q(j\alpha)$ bzw. geringer $\nu << \omega_Q(j\alpha)$ Fluktuation lassen sich aus Reihenentwicklungen des Matrizanten in einfacher Weisé brauchbare Näherungen angeben. Ihre Gültigkeit werden wir an den exakten Lösungen untersuchen,

a) $\nu << \omega_Q(j\alpha)$

Es folgt aus

$$\mathcal{G}(t,t_0) = e^{-\nu(t-t_0)} \sum_{j\alpha,l\beta} e^{-i\hat{H}_{j\alpha}(t-t_0)} [j\alpha | \Omega_{t_0}^{t} (e^{+i\hat{\mathcal{H}}\tau} \nu M_1 e^{-i\hat{\mathcal{H}}\tau}) | l\beta] \rho_{l\beta}(t_0) , \quad (4.17)$$

daß sich für $\nu << \omega_Q(j\alpha)$ sofort

$$\mathcal{G}(t,t_0) \approx e^{-\nu(t-t_0)} \mathcal{G}^{stat}(t,t_0) \quad (4.18)$$

ergibt. Der gemittelte Evolutionsoperator errechnet sich aus einer linearen Überlagerung der differentiellen Störfaktoren bezüglich der Wechselwirkungs-Liouvilleoperatoren $\hat{H}_{j\alpha}$, gewichtet jeweils mit einer beliebigen a priori Wahrscheinlichkeitsdichte und gedämpft mit einer vom quantenmechanischen System unabhängigen einzigen Dämpfungskonstanten ν. Der integrale Ausdruck lautet

$$\mathcal{G}(\rho,t_0) \approx \mathcal{G}^{stat}(\rho+\nu,t_0) \quad (4.19)$$

und wird in gleicher Weise wie in (4.5b) gebildet.

b) $\nu >> \omega_Q(j\alpha)$

Der Grenzfall starker Fluktuation läßt sich nicht in der einfachen Weise wie im quasistatischen Bereich a) behandeln. Die Singularität von W muß bei großer Sprungfrequenz ν beachtet werden, damit nicht der Dämpfungsanteil jeden Einfluß der

Wechselwirkung zunichte macht. Der Eigenwert $\lambda=0$ der Matrix W ist die entscheidende Größe. Es zeigt sich deshalb, wie schon bei der Ableitung der RPA genannt, daß der Unterschied zwischen W und W^{RPA} sich für hohe Sprungfrequenzen nicht auswirkt. Beide haben den gemeinsamen Eigenwert $\lambda=0$. Wir erhalten aus der Reihenentwicklung von $\mathcal{G}(t,eq)$ im Grenzfall $\nu>>\omega_Q(j\alpha)$

$$\mathcal{G}(t,eq) \approx \exp\{(-i\langle\mathcal{H}\rangle_{eq} - \mathcal{R})t\} \tag{4.20a}$$

mit

$$\langle\mathcal{H}^n\rangle_{eq} = \sum_{j\alpha} \hat{H}^n_{j\alpha}\, \rho^{eq}_{j\alpha} \quad ; \quad \mathcal{R} = \frac{1}{\nu}\{\langle\mathcal{H}^2\rangle_{eq} - \langle\mathcal{H}\rangle^2_{eq}\} \quad . \tag{4.20b}$$

Man sieht, daß durch die hohe Fluktuation eine gemittelte Wechselwirkung entsteht, die die Evolution des Systems bestimmt. Entsprechend wird das Dämpfungsverhalten durch den Mittelwert des Wechselwirkungsquadrates gegeben. In unserem Sprungmodell interpretiert, heißt das: Der Sondenkern erfährt nicht den von einer einzelnen Leerstelle erzeugten Feldgradienten, sondern den über alle möglichen Gitterplätze gemittelten Feldgradienten. Wenn, wie im kubischen Gitter, aus Symmetriegründen $\langle\mathcal{H}\rangle_{eq}=0$ ist, erhalten wir den Grenzfall von Abragam und Pound [28] innerhalb eines diskreten Gittermodells. Zusätzliche Annahme von (4.9) führt zu

$$(U^{(k)}_q(\omega) \mid \mathcal{R} \mid U^{(k')}_{q'}(\omega)) = \delta_{kk'}\delta_{qq'}\cdot\lambda_k$$

$$\lambda_k = \frac{2}{\nu}\left\{\frac{1}{2I+1} - (-)^{k+2I}\begin{Bmatrix} I & 2 & I \\ I & k & I \end{Bmatrix}\sum_j \omega^2_{Qj}\rho^{eq}_j\right\} \tag{4.21}$$

im Falle der Quadrupolwechselwirkung. Dies entspricht (56) in [7].

Die integralen Störfaktoren ergeben sich aus der Fouriertransformierten von (4.20) und lauten im Grenzfall $\nu\to\infty$

$$\mathcal{G}(p,eq) = \frac{1}{p + i\langle\mathcal{H}\rangle_{eq}} \quad . \tag{4.22}$$

5. Die Berechnung der a priori Wahrscheinlichkeiten $p_j(t)$

Hochenergetische Ionen werden in Metallgittern vorwiegend durch den Stoß mit Wirtsatomen des Gitters abgebremst. (Die Streuung an Leitungselektronen ist vernachlässigbar). Dabei erhalten die Gitteratome eine so hohe Rückstoßenergie, daß sie selber Stoßpartner für noch ruhende Gitteratome werden. Die Folge ist eine sogenannte Stoßkaskade. Wenn der Sondenkern zur Ruhe gekommen ist (t=0), ist eine äußerst komplizierte Verteilung von Defekten, wie Leerstellen und Zwischengitteratomen, entstanden. Während in den meisten Fällen, insbesondere wenn sich Sondenkernatome nur geringfügig von den Wirtsatomen unterscheiden, der Sondenkern auf einem regulären Gitterplatz angenommen werden kann, ist eine Aussage über den extremen Nichtgleichgewichtszustand seiner Umgebung zum Zeitpunkt t=0 nicht möglich. Die für die Berechnung des effektiven Evolutionsoperators notwendige Kenntnis der Defektverteilung $p_{j\alpha}(t)$ zum Zeitpunkt $t_o>0$ der Besetzung des isomeren Kernniveaus erhalten wir nur, wenn sich das System in einen vom Zeitpunkt t=0 unabhängigen Gleichgewichtszustand entwickelt hat. Nach kurzfristigen, athermischen Veränderungen, die die Defektkonzentration innerhalb 10^{-11} sec auf wenige Prozent verringern, folgen thermisch kontrollierte Diffusionen von Leerstellen und Zwischengitteratomen. Wegen ihrer niedrigen Wanderungsenergie $E_M^I \approx 0.2$ eV sind die Zwischengitteratome bei tiefen Temperaturen allein beweglich und bestimmen die Rate, mit der Leerstellen durch Rekombination mit ihnen vernichtet werden. Die Wanderung von Leerstellen beginnt wegen $E_M^V \approx 1$ eV erst bei höheren Temperaturen und erfolgt langsamer. Lokale Temperaturerhöhungen durch den Abbremsprozeß (thermal spike) bewirken eine erhöhte Diffusion der Leerstellen insbesondere in der Nähe des Sondenkerns.

Im folgenden Kapitel untersuchen wir mit einem einfachen Modell, wie sich eine angenommene a priori Wahrscheinlichkeitsverteilung $p_{j\alpha}(t=0)$ von Leerstellen auf Schalen j um den Sondenkern zeit-

lich in eine Gleichgewichtsverteilung p_j^{eq} entwickelt. Wir haben aus der Vielfalt der entstandenen Defekte als Beispiel die Einzelleerstellen ausgewählt, jedoch lassen sich andere Punktdefekte, z.B. Zwischengitteratome, Doppelleerstellen usw. nach der gleichen Methode behandeln.

5.1 Das zeitliche Verhalten von $p_j(t)$

Nehmen wir an, daß zur Zeit t=0 eine zentrisch-symmetrische, sonst aber beliebig gewählte Anfangsverteilung $p_{j\alpha}(t=0) = \frac{1}{n_d} p_d(t=0)$ (n_j Zahl der Plätze in Schale j) vorliegt. Die angenommene Symmetrie führt zu einer Reduktion der stochastischen Zustände und erlaubt die Anwendung des Schalensprungmodells, das in Kap. 4.2 beschrieben wurde. Den Übergang von einer asymmetrischen zu einer zentrisch-symmetrischen Verteilung erfassen wir, wenn wir die unreduzierte Form von M_1 nach (3.10) verwenden.

Wir betrachten zwei Prozesse. Leerstellen, die sich um den Implantationskern mit einer lokal erhöhten Konzentration befinden, werden sich wegen des Konzentrationsgradienten gleichmäßig auf das restliche Gitter verteilen; zusätzlich werden Leerstellen an Versetzungen, Rändern usw. als Senken vernichtet.
Der Abbau der Konzentrationsunterschiede kann durch die Ratengleichung

$$\frac{d}{dt} p_d(t) = \sum_l [j|\nu(\tilde{M}_1^S - E)|l]\, p_l(t) \qquad (5.1)$$

mit einer aus den Gln. (3.10) und (4.13b) gebildeten Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1^S$ beschrieben werden. Man beachte, daß die Sprungraten $[j|\tilde{M}_1^S|u]$ nach Kap. 3.2.1 bezüglich der Gleichgewichtskonzentration c_V^{eq} bei Vernachlässigung von Senkeneffekten bestimmt werden. Dies ist nur für sehr kleine Sen-

kenkonzentrationen richtig. Um Senken zu berücksichtigen, ersetzen wir die Matrix $\tilde{M}_1^S$ durch $\bar{M}_1^S$, die eine um eins höhere Dimension gegenüber $\tilde{M}_1^S$ durch Hinzunahme eines stochastischen Zustandes $|s]$ hat. Er ist gekennzeichnet dadurch, daß eine diffundierende Leerstelle eine Senke erreicht hat, die sie nicht mehr verlassen kann. Für eine Senke im Umgebungsbereich gelten für die Sprungwahrscheinlichkeiten in Senken $[s|\bar{M}_1^S|j]$ und $[s|\bar{M}_1^S|u]$ die Bedingungen

$$[s|\bar{M}_1^S|j] + [u|\bar{M}_1^S|j] = [u|\tilde{M}_1^S|j] \qquad (5.2a)$$

$$[s|\bar{M}_1^S|u] + [u|\bar{M}_1^S|u] = [u|\tilde{M}_1^S|u] \qquad (5.2b)$$

und für die Wahrscheinlichkeiten für das Verlassen der Senke

$$[j|\bar{M}_1^S|s] = [u|\bar{M}_1^S|s] = 0 \quad . \qquad (5.2c)$$

Die von der Leerstellenkonzentration c_V abhängigen Rücksprungraten $[j|\bar{M}_1^S|u]$ für einen Sprung aus dem Umgebungsbereich in den diskreten Raumbereich nehmen wir näherungsweise konstant an, um ein einfaches Differentialgleichungssystem für die a priori Wahrscheinlichkeiten $p_J(t) \equiv p_j(t), p_u(t), p_s(t)$ (J Gesamtindex für Schale, Umgebung und Senke) zu erhalten. Es lautet

$$\frac{d}{dt} p_J(t) = \sum_L [J|\nu(\bar{M}_1^S - E)|L]\, p_L(t) \qquad (5.3)$$

mit der formalen Lösung

$$p_J(t) = \sum_L [J|\exp\{\nu t(\bar{M}_1^S - E)\}|L]\, p_L(0) \quad . \qquad (5.4)$$

Wir wenden Gl. (5.4) an einem einfachen Beispiel an. Betrachtet wird ein kubisch flächenzentriertes Gitter mit einer Schale unter Berücksichtigung einer Leerstellen-Sondenkern-Bindungsenergie E_B. Die Senkenkonzentration sei derart gering, daß wir keine Leerstellensprünge aus der ersten Schale in eine Senke berücksichtigen müssen. Wir erhalten aus den Ratengleichungen

$$\frac{d}{dt}\begin{pmatrix} p_1(t) \\ p_u(t) \\ p_s(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -7ab\nu & 42\gamma\nu & 0 \\ +7ab\nu & (\Lambda_u-1)\nu & 0 \\ 0 & \delta\nu & 0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} p_1(t) \\ p_u(t) \\ p_s(t) \end{pmatrix} \qquad (5.5)$$

mit $42\gamma+\Lambda_u+\delta=1$ und der Rücksprungrate $\gamma = \frac{c_v}{6(1-12c_v)}$.
Es ergeben sich mit

$$\frac{d}{dt}\, p_1(t) = -7ab\nu\, p_1(t) + 42\nu\gamma\, p_u(t) \qquad (5.6)$$
$$\frac{d}{dt}\, p_u(t) = +7ab\nu\, p_1(t) - 42\nu\gamma\, p_u(t) - \delta\nu\, p_u(t)$$

die chemischen Ratengleichungen, wie sie Koiwa [29] benutzt, und aus der allgemeinen Form nach Damask und Dienes [4] unter Vernachlässigung von Interferenztermen folgen (Man beachte, daß $\nu_{Damask,Dienes} = \nu/12$ in unserer Nomenklatur entspricht, vgl. Manning [14]). Diese Terme treten nicht auf, da die Abhängigkeit der Sprungraten von der Leerstellenkonzentration vernachlässigt worden ist. Das Gleichungssystem läßt sich analytisch lösen. Es ergibt sich

$$p_1(t) = \alpha\,\{\, p_1(0)\,(\ell_1 e^{\lambda_1 t} - \ell_2 e^{\lambda_2 t}) + p_u(0)\,(e^{\lambda_1 t} - e^{\lambda_2 t})\}$$

$$p_u(t) = \alpha\,\{\, p_1(0)\,(\ell_1 e^{\lambda_1 t} - \ell_2 e^{\lambda_2 t}) + p_u(0)\,(e^{\lambda_1 t} - e^{\lambda_2 t})\} \qquad (5.7a)$$

mit $$\lambda_{1,2} = \nu \cdot \left(-\frac{7ab+42\gamma+\delta}{2} \pm \left\{ \left(\frac{7ab+42\gamma+\delta}{2} \right)^2 - 7ab\delta \right\}^{1/2} \right)$$

$$\alpha = 21\nu\gamma \left\{ \right\}^{-1/2} ; \quad \tau_i = \frac{\lambda_i + 7ab\nu}{42\nu\gamma} ; \quad l_i = \frac{\lambda_i + 42\nu\gamma + \delta\nu}{42\nu\gamma} . \qquad (5.7b)$$

Das asymptotische Verhalten wird nach Gl. (5.7) durch eine exponentielle Dämpfung

$$p_j(t) = p_j^{eq} e^{-\lambda_1 t} \qquad (5.8)$$

beschrieben. Für $\delta = 0$ gehen die Gleichungen in (5.1) über.
In Abb. 5.1 sind die a priori Wahrscheinlichkeiten $p_1(t)$ und $p_u(t)$ für verschiedene Senkenkonzentrationen aufgetragen.

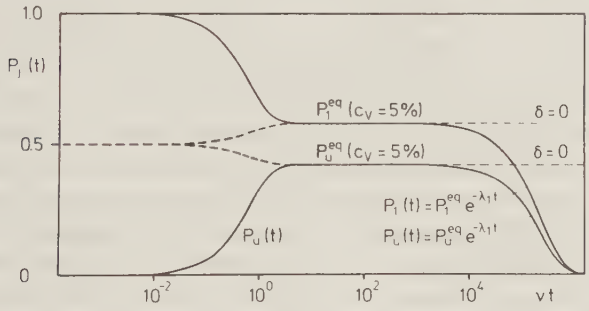


Abb.5.1 Berechnete a priori Wahrscheinlichkeiten $p_j(t)$ für ein k.f.z.-Gitter mit verschiedenen Anfangsverteilungen
——— $p_1(0)=1$; $p_u(0)=0$ – – – – $p_1(0)=p_u(0)=\frac{1}{2}$
und Senkenraten
——— $\delta = 10^{-5}$ $\delta = 0$

Als Anfangsverteilung wurde angenommen, daß die Leerstelle sich in der ersten Schale befindet (durchgezogene Kurve).
Die Leerstellenkonzentration ist c_V=5%, die Bindungsenergie E_B

wurde vernachlässigt. Das Abwandern der Leerstellen aus der ersten Schale beginnnt für Zeiten $\nu t > 10^{-2}$. Es stellt sich entsprechend der Leerstellenkonzentration c_V eine Gleichgewichtsverteilung ein. Sie wird für große Zeiten exponentiell abgebaut. Dieser Prozeß beginnt umso früher, je größer die Senkenkonzentration ist. Die in Abb. 5.1 gestrichelten Kurven geben die zeitliche Entwicklung von $p_1(t)$ und $p_u(t)$ an, wenn als Anfangsverteilung $p_1(0)=p_u(0)=0.5$ gewählt wird. Auch hier stellt sich erst eine Gleichgewichtsverteilung ein, ehe durch das Abwandern der Leerstellen zu Senken eine allgemeine Abnahme zugunsten von $p_s(t)$ auftritt. Der erkennbare Stufenprozeß darf nicht mit isochronen Ausheilkurven (vgl. Damask und Dienes [4]) verwechselt werden. Es handelt sich hier um isotherme Ausheilkurven, die gleichzeitig den Abbau des Konzentrationsgradienten um einen Sondenkern beschreiben.

5.2 Die Gleichgewichtswahrscheinlichkeiten p_j^{eq}

Wir untersuchen unter Vernachlässigung der Senken, in welchem Zeitraum sich eine Gleichgewichtsverteilung von Leerstellen ausgebildet hat und welche Werte $p_j(t)$ in Abhängigkeit von Bindungsenergie und Leerstellenkonzentration eingenommen werden. Die Auswertung von (5.1) wird wiederum am Beispiel des k.f.z. Gitters vorgenommen, jedoch wird ein diskreter Raumbereich bestehend aus 7 Schalen ($n_d=134$, $c_V<0.07$) berücksichtigt. In Tabelle 2 sind die zur Aufstellung der Matrix $\tilde{M}_1^S$ benötigten Werte,wie Zahl nächster Nachbarn und Gitterplätze der j-ten Schale,zusammengefaßt.

Schale	Koordinaten	Platzzahl n_j	Zahl n nächster Nachbarn in l-ter Schale (l. x n)
1	1 1 0	12	1. x 4, 2. x 2, 3. x 4 4. x 1
2	2 0 0	6	1. x 4, 3. x 4, 5. x 4
3	2 1 1	24	1. x 2, 2. x 1, 3. x 2 4. x 2, 5. x 2, 6. x 1 7. x 2
4	2 2 0	12	1. x 1, 3. x 4, 5. x 2 7. x 4, 9. x 1
5	3 1 0	24	2. x 1, 3. x 2, 4. x 1 5. x 2, 7. x 2, 8. x 1 10. x 2, 11. x 1
6	2 2 2	8	3. x 3, 7. x 6, 12. x 3
7	3 2 1	48	3. x 1, 4. x 1, 5. x 1 6. x 1, 7. x 2, 9. x 1 10. x 1, 11. x 1, 12. x 1 13. x 1, 14. x 1

Tabelle 2 : Klassifikation der Gitterplätze für ein k.f.z. Gitter

Die Sprungmatrix $\tilde{M}_1^{S.}$ lautet nach (3.10) und (4.13b)

$$
\begin{pmatrix}
1\text{-}7ab & 1/3 & 1/6 & 1/12 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
2ab & 0 & 1/12 & 0 & 1/12 & 0 & 0 & 0 \\
4ab & 1/3 & 1/6 & 1/3 & 1/6 & 1/4 & 1/12 & 0 \\
ab & 0 & 1/6 & 0 & 1/12 & 0 & 1/12 & c \\
0 & 1/3 & 1/6 & 1/6 & 1/6 & 0 & 1/12 & 8c \\
0 & 0 & 1/12 & 0 & 0 & 0 & 1/12 & 2c \\
0 & 0 & 1/6 & 1/3 & 1/6 & 1/2 & 1/6 & 24c \\
0 & 0 & 0 & 1/12 & 1/3 & 1/4 & 1/2 & 1\text{-}35c
\end{pmatrix}
\tag{5.9a}
$$

mit

$$p_j^{eq} = \frac{1 - p_j^{eq}}{1 + 122\,ab}$$

$$c = \frac{ab(1 - p_j^{eq})}{p_j^{eq}(1 + 122ab)} \qquad p_u^{eq} = \frac{ab(1 - 134\,c_v)}{c_v(1 - 12ab) + ab} \quad . \tag{5.9b}$$

Die Anfangsverteilung $p_j(t=0)$ ist im allgemeinen weder experimentell noch theoretisch bekannt. Wir nehmen eine isotrope Leerstellenverteilung innerhalb des diskreten Bereiches $p_j(t=0) = n_j / \sum n_j$ für unsere numerische Behandlung an.

Die Abb. 5.2-5.4 zeigen die zeitliche Entwicklung der a priori-Wahrscheinlichkeiten für die Leerstellenkonzentration c_V=0.25%, Leerstellenwanderungsenergie E_M=1 eV, Leerstellen-Sondenkern - Bindungsenergien E_B=0 und E_B= 1 eV, Temperatur T=300 K und 600 K. Der Sondenkern diffundiert nicht (p_I=0).

Wir erkennen drei Zeitbereiche. Für Zeiten $\nu t < 10^{-2}$ ändert sich die Anfangsverteilung nicht. Die Auswertung von Meßgrößen, die in dieses Zeitfenster fallen, ist im allgemeinen nicht möglich. Es folgt ein Übergangsbereich, in dem sich je nach Parametersatz die Anfangswahrscheinlichkeiten in eine Gleichgewichtsverteilung p_j^{eq} entwickeln. Man beachte, daß sich der Übergangsbereich bis $\nu t \approx 10^2$ erstreckt im Gegensatz zu Abb. 5.1. Das hat zwei Gründe:
Im Zweischalenmodell kann durch den Umgebungszustand, der die Gitterstruktur nicht berücksichtigt, viel schneller jeder Punkt der ersten Schale erreicht werden, als in einem Modell mit 8 Schalen. Hier muß eine Leerstelle durch mehrere Schalen diffundieren und die genaue Gitterstruktur beachten, ehe es auf einen Platz z.B. der ersten Schale kommt. Vergleichen wir Modelle mit sechs, acht und elf Schalen [30] , stellen wir keinen Unterschied im Zeitbereich fest. Man darf folgern, daß die chemischen Ratengleichungen wegen ihrer Identität mit Gl. (5.6) ein fehlerhaftes Verhalten im Kurzzeitbereich ergeben. Der Prozeß verläuft langsamer als es ihre Lösungen angeben (Koiwa und McEwen [31]).

Zeitliche Entwicklung einer Leerstellenanfangsverteilung $p_j(0)=n_j/\Sigma n_j$ für ein k.f.z Gitter unter Berücksichtigung eines sieben Schalenmodells

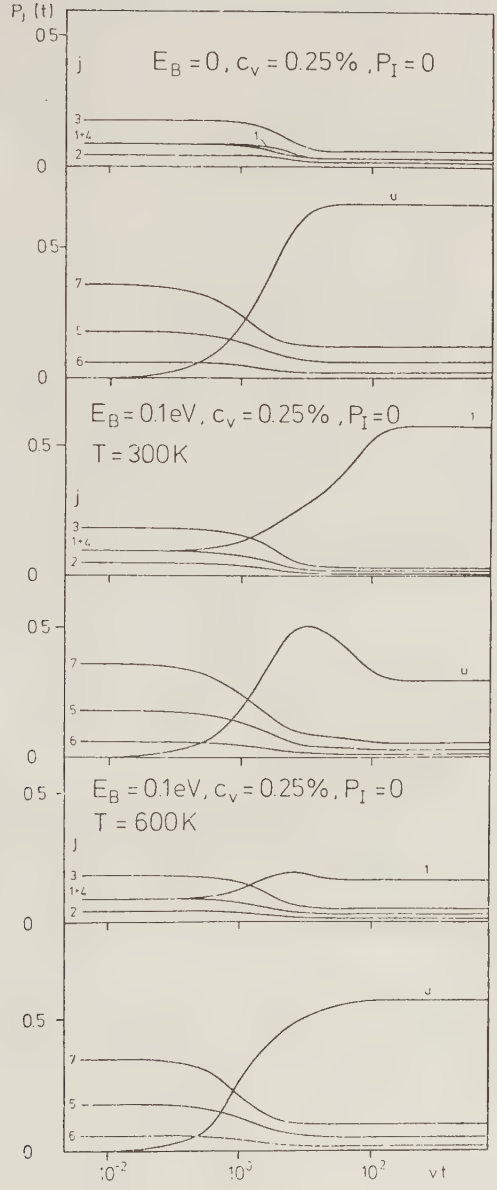


Abb.5.2

Abb.5.3

Abb.5.4

Eine Verschiebung des Zeitpunktes für das Erreichen des Gleichgewichts wird auch durch die Bindungsenergie $E_B>0$ verursacht (Abb. 5.3 und 5.4). Durch sie wird die freie Leerstellendiffusion verzögert. Die Leerstellen werden in der ersten Schale kurzfristig eingefangen. Es kann ein lokaler Konzentrationsgradient entstehen ($p_u(t)>p_u^{eq}$), dessen Abbau zur Gleichgewichtsverteilung zusätzlich Zeit benötigt (Abb. 5.3). Bei hohen Temperaturen (Abb. 5.4) geht dieser Einfluß wegen des Faktors $b=e^{-E_B/kT}$ merklich zurück.

Für große Zeiten $\nu t>10^{+2}$ ändert sich die Verteilung nicht mehr. Wie nach Gl. (5.9b) zu erwarten, nimmt die Wahrscheinlichkeit, eine Leerstelle in der ersten Schale zu finden, für größer werdendes E_B zu, alle anderen $p_j(t)$ und p_u jedoch ab. Kleinere Leerstellenkonzentrationen erhöhen die Wahrscheinlichkeit, die Leerstelle in der Umgebung zu finden, und vermindern entsprechend die Aufenthaltswahrscheinlichkeit innerhalb des diskreten Bereichs. Dieses Verhalten, nur bezüglich der ersten und Umgebungs-Schale aufgetragen, ist in Abb. 5.5 dargestellt. Die Wahrscheinlichkeiten der Zwischenschalen ergeben sich aus

$$p_j^{eq} = \frac{n_j}{122}\left\{1-(p_1^{eq}+p_u^{eq})\right\} \quad . \qquad (5.10)$$

Die in den Abb. 5.2-5.4 gerechneten Fälle sind in Abb. 5.5 durch Kreise gekennzeichnet.

Die Unabhängigkeit der Gleichgewichtsverteilung von der durch Implantation entstandenen läßt die Interpretation von Messungen zu, deren Beobachtungszeit T_{ab} in den Langzeitbereich $10^{+2}<\nu T_{ab}$ fallen. Ein Rückschluß von p_j^{eq} auf die Anfangsverteilung $p_j(t=0)$ ist nicht möglich, da $(\tilde{M}_1^S-E)$ singulär und damit nicht invertierbar ist.

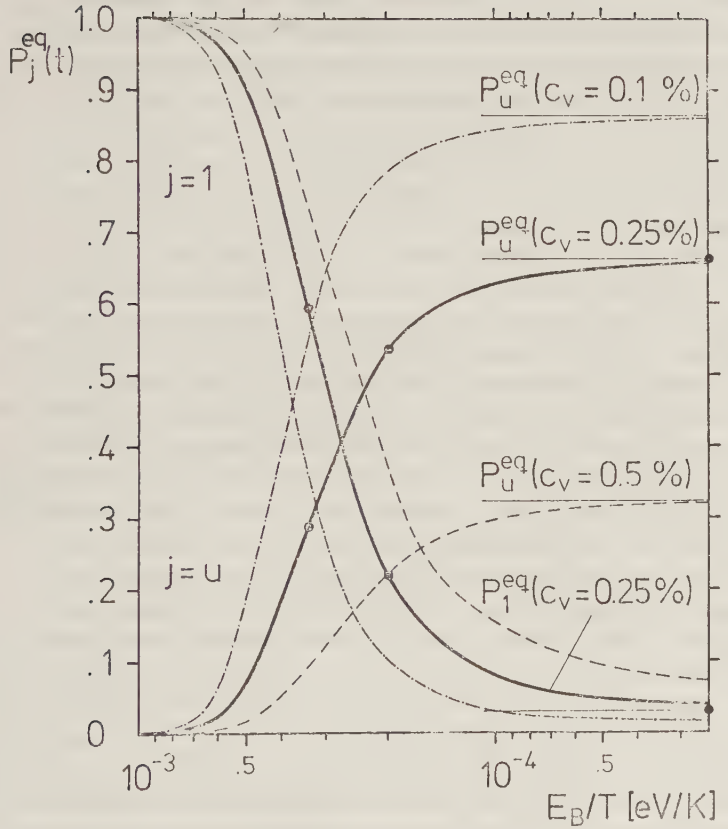


Abb. 5.5 Gleichgewichtsverteilungen p_1^{eq} und p_u^{eq} für ein sieben Schalenmodell eines k.f.z. Gitters in Abhängigkeit von Leerstellen-Sondenkern-Bindungsenergie E_B und Temperatur T.

6. Der Feldgradientenansatz

Die Berechnung des Feldgradienten, der von einer Punktladung z.B. Einzelleerstelle am Ort eines substitutionell implantierten Fremdatoms erzeugt wird, verlangt die Kenntnis der Ladungsverteilung $\rho(\vec{r})$ im gesamten gestörten Gitter. Aus ihr lassen sich mit Hilfe der Poissongleichung

$$\Delta\phi(\vec{r}) = -4\pi\rho(\vec{r}) \tag{6.1}$$

das elektrostatische Potential $\phi(\vec{r})$ und durch Differentiation die Komponenten des elektrischen Feldgradiententensors $V_q^{(2)}$ bilden. In vielen Fällen ist es nützlich, von der Ladungsverteilung um ein Fremdatom ohne zusätzliche Ladungsstörung $\rho^G(\vec{r})$ auszugehen, um Gittersymmetrien auszunützen. Den von $\rho^G(\vec{r})$ hervorgerufenen Feldgradienten V_q^G nennen wir gittertypisch. Er hängt allerdings vom Fremdatom ab, da nach Sternheimer [32] die Leitungselektronen die abgeschlossenen Schalen des Fremdatoms unterschiedlich polarisieren (Sternheimer Abschirmfaktor $(1-\gamma_\infty)$). In kubischen Gittern ist $V_q^G(\vec{r}=0) = 0$, solange keine Gitterverzerrungen auftreten. In anderen Gittern muß V_q^G entweder dem Experiment entnommen oder durch komplizierte Rechnungen bestimmt werden, z.B. de Wette [32], Lodge und Sholl [34]. Der Feldgradient für unser Problem setzt sich somit aus

$$V_q^{(2)} = V_q^G - V_q^{(2)}(\vec{r}_{j\alpha}) \tag{6.2}$$

zusammen, wobei $V_q^{(2)}(\vec{r}_{j\alpha})$ die Komponenten des elektrischen Feldgradiententensors sind, die durch Änderung $\delta\rho(\vec{r})$ der Ladungsverteilung im ungestörten Gitter $\rho^G(\vec{r})$ durch eine Einzelleerstelle am Ort $\vec{r}_{j\alpha}$ entstehen. Wenn wir voraussetzen, daß die Konzentration der Einzelleerstellen gering ist, so daß Wechselwirkungen zwischen den Leerstellen vernachlässigbar sind,

haben wir das Problem zurückgeführt auf die Behandlung der Abschirmung einer Punktladung in einem Elektronengas. In Kap. 6.1 werden wir die von zahlreichen Autoren entwickelten Theorien kurz schildern und auf ihre Gültigkeit an Hand von Experimenten (Implantation von Fremdatomen in eine Kupfermatrix) untersuchen. Die ungenügenden Ergebnisse werden uns in Kap. 6.2 dazu führen, einen empirischen Ansatz für die Ladungsdichte $\delta\rho(\vec{r})$ zu versuchen. Er beschreibt das prinzipielle Verhalten näherungsweise und läßt alle Komponenten, auf die ein PAC/PAD-Experiment, wie wir es behandeln, nicht empfindlich ist, unberücksichtigt.

6.1 Abschirmung einer Punktladung in einem Elektronengas

Die Berechnung der Elektronendichteänderung $\delta\rho(\vec{r})$ durch Einbringen einer Punktladung ze in ein Elektronengas kann auf verschiedene Weise geschehen. Rechnungen von Mott [35] und Langer und Vosko [36] basieren auf einer linearisierten Thomas-Fermi Näherung. Sie erhalten

$$\delta\varrho(r) \sim \frac{1}{r}\exp\{-\lambda_{TF} r\} \quad ; \quad \lambda_{TF} = \left(\frac{4k_F}{\pi a_0}\right)^{1/2} \quad . \qquad (6.3)$$

k_F = Wellenzahl der Elektronen an der Fermifläche, $a_0 = \frac{\hbar^2}{m_e e^2}$ = a.u.

Die Proportionalitätskonstante wird durch die Bedingung

$$\int_V \delta\varrho(r)\, d^3r = ze \qquad (6.4)$$

bestimmt, da die Gesamtladung erhalten bleiben muß.

Für große Entfernungen von der Punktladung errechnet Friedel [37] die Dichteverteilung

$$\delta\varrho(r) = \frac{A}{r^3}\cos(2k_F r + \varphi) \qquad (6.5)$$

für freie Elektronen, die am kurzreichweitigen kugelsymmetrischen Potential der Punktladung ze gestreut werden. Sie ist eine oszillierende Funktion mit einer von der Fermi-Energie der Elektronen abhängigen Periode. Die Bestimmung der Phase φ bzw. der Amplitude A geschieht durch Angabe der Streuphasen η_l für die Partialwelle l zusammen mit der zu (6.4) analogen Friedelschen Summenregel

$$\frac{2}{\pi}\sum_l (2l+1)\eta_l = \Delta z \quad , \qquad (6.6)$$

wobei Δz die Valenzdifferenz zwischen Sondenatom und Wirtsatom bedeutet. Man erhält die Streuphasen entweder aus Meßgrößen, die von η_l abhängen (z.B. Restwiderstandswerten, Kohn und Vosko [38]), oder durch die Annahme von Modellstreupotentialen, Hurd und Gordon [39], Meyer et al. [40]. In Erweiterung der Ergebnisse von Friedel berechnen Kohn und Vosko [38], Flynn und Odle [41] und Adawi [42] Korrekturen für ein schwach entartetes Elektronengas und erhalten die gleiche Form wie in Gl. (6.5) mit veränderten Koeffizienten A und φ. In Abb. 6.1 ist für zwei Sondenatome in Kupfer die Abschirmladung $\delta\varrho(r)$ nach Gl. (6.5) dargestellt. Die von March und Murray [43] durchgeführten Hartree-Rechnungen speziell für Leerstellen unterstützen diese Ergebnisse und zeigen die Modifikation der TF-Lösung, Gl. (6.3). Im Nahbereich ist eine Beschreibung durch einen Friedel-Ansatz nach (6.5) nicht möglich. Dies wird erhärtet durch die Rechnungen von Stott et al. [44] und von Robinson und de Chatel [45] für Elektronendichteverteilungen um eine Leerstelle. Der wesentliche Unterschied der beiden letzten Rechnungen liegt bei $\delta\rho(r\approx 0)$.

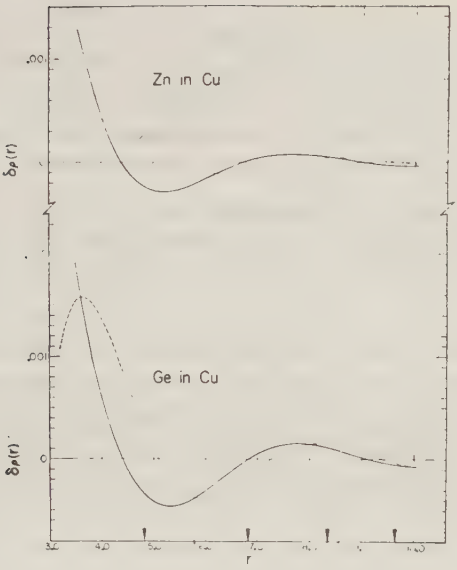


Abb. 6.1 Abschirmladungsdichte $\delta_S(r)$ um ein Sondenatom in Kupfer r_s=2.55 a.u. bei 1000°C. Die gestrichelte Kurve zeigt die Friedel-Oszillationen nach Gl.(6.5), die durchgezogene die Ergebnisse von Alfred und Ostenburg [48] . Die Pfeile geben die Position der Nachbaratome an.

Die Pseudopotentialrechnungen von Rasolt und Taylor [46] und von Dagens et al. [47] beziehen sich ebenfalls auf den Nahbereich. Einer stark abnehmenden Elektronendichte $\rho(r)$ folgt ein oszillierendes Verhalten, dem eine r^{-3}-Dämpfung überlagert ist (vgl. Abb. 6.2).

Die Frage, für welche Abstände der in Gl. (6.5) beschriebene Verlauf bestimmend ist, wird in der Arbeit von Alfred und Ostenburg [48] beantwortet. Sie zeigen für verschiedene Entartungsgrade des Elektronengases, daß Gl. (6.5) erst für sehr große Entfernungen gilt und im übrigen Bereich eine sehr grobe Näherung darstellt (Abb. 6.1). Bemerkenswert ist es, daß Oszillationen für ein Elektronengas jeden Entartungsgrades auftreten.

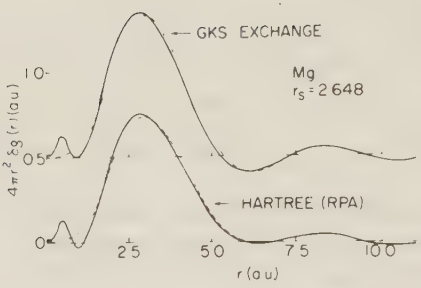


Abb. 6.2 Abschirmladungsdichte $\delta_S(r)$ um ein Sondenatom in einem Elektronengas r_s=2.648 a.u. für verschiedene Pseudopotentialrechnungen (GKS-Exchange, Hartree) nach Rasolt und Taylor [46]. Der Deutlichkeit halber sind die GKS-Exchange Ergebnisse gegenüber den Hartree Ergebnissen um 0.5 a.u. nach oben verschoben gezeichnet.

Inwieweit werden die gewonnenen theoretischen Ergebnisse durch Experimente bestätigt? Zur Beantwortung dieser Frage werden Ergebnisse einer magnetischen Kernresonanzmessung herangezogen, die an einkristallinen kubischen Kupferproben mit dotierten Fremdatomen geringer Konzentration durchgeführt wurden. Erste Messungen von Rowland [49] konnten von Kohn und Vosko [38] erklärt werden. Da Rowland den Einfluß der einzelnen Fremdatome bezüglich ihrer Lage nicht auflösen konnte, mußte eine Mittelung über alle Lagen durchgeführt werden, die das Ergebnis jedoch unempfindlich auf die genaue Potentialform macht. In den Experimenten von Jensen et al. [50], Schnakenberg und Schuhmacher [51], Nevald et al. [52] und Nevald und Petersen [53] gelingt eine Zuordnung der NMR-Signale zu einzelnen Plätzen, so daß der Potentialansatz für die nächsten, übernächsten und zum Teil drittnächsten Nachbarn überprüft werden kann. Verwendet wurden die Ergebnisse von Alfred und Ostenburg [48] mit Korrekturen nach Béal-Monod und Kohn [54] und Blatt [55], in denen die unterschied-

lichen Atomvolumina von Wirts- und Fremdatom berücksichtigt werden. Sie erhalten

a) einen um die Verbindungsachse Sondenkern-Fremdatom nicht axialsymmetrischen Feldgradienten am Ort des nächsten Nachbarn

b) einen im Vergleich zur theoretischen Vorhersage geringen und vom Fremdatom kaum abhängigen Feldgradienten am Ort des nächsten Nachbarn

c) eine gute Beschreibung des Anteils der übernächsten Nachbarn bezüglich der Fremdatomvalenzabhängigkeit.

Die Ergebnisse zeigen, daß für den Nahbereich alle bisherigen Theorien versagen, da sie immer eine radialsymmetrische Dichteverteilung berechnen. Ebenso sind die Absolutwerte von theoretisch berechneten Feldgradienten mit Vorsicht zu betrachten.

Die auftretende Asymmetrie a) legt die Vermutung nahe, daß Gitterverzerrungen zu zusätzlichen Feldgradienten führen. Kanert und Mehring [56] weisen jedoch darauf hin, daß Verzerrungen der Gitterstruktur durch punktförmige Störstellen bedeutend kleinere Beträge zum Feldgradienten als die Beiträge der Leitungselektronen hervorrufen. Eine Klärung dieser Frage wurde in dieser Arbeit nicht angestrebt.

6.2 Näherungsansatz für die Ladungsdichte $\delta\rho(r)$

Ein empirischer Ansatz für die Änderung der Ladungsdichteverteilung $\delta\rho(r)$ um eine Leerstelle muß nach den Ergebnissen von Kap. 6.1 folgende Eigenschaften haben:

a) Für geringe Abstände eine starke Abnahme ähnlich der Thomas-Fermi-Näherung (6.3). Dieser Bereich erstreckt sich bis zu Abständen der Größenordnung nächster Nachbarn.

b) Langreichweitige Anteile, deren oszillierende Amplitude gedämpft wird, ähnlich Gl. (6.5).

Wir vernachlässigen das oszillierende Verhalten. Die von uns untersuchten Größen, die gemittelten Störfaktoren, sind im Falle niedriger Sprungfrequenzen $\nu \to 0$ unabhängig vom Vorzeichen der Feldgradienten, vergl. Kap. 7. Auch ist eine Auflösung einzelner Frequenzen nicht möglich. Wie im Experiment von Rowland [49] bestimmt die mittlere Amplitude des langreichweitigen Anteils die Form der Störfaktoren. Da wir uns auf maximal 11 Schalen in der Behandlung beschränken werden, ist eine Phasenwahl nach Kohn und Vosko [38] unzulässig. Die Abstände von der Leerstelle sind zu gering. Eine Anpassung nach Alfred und Ostenburg [48] erscheint nur dann nötig, wenn eine Separation der einzelnen Frequenzen, bedingt durch Leerstellen, gelingt. Wie wir in Kap. 8 zeigen werden, sind die Ergebnisse zudem recht unempfindlich auf den Feldgradientenansatz.

Im Bereich starker Fluktuation ergibt sich in Kap. 7 , daß der Einfluß nächster Nachbarn die Störfaktoren wesentlich bestimmt.

Höhere Schalen modifizieren die Ergebnisse nur gering. Die in Kap. 6.1 genannten experimentellen Ergebnisse haben gerade gezeigt, daß Dichteverteilungen $\delta\rho(r)$ mit oszillierendem Verhalten nicht bis zur ersten Schale extrapoliert werden dürfen. Es erscheint uns auch in diesem Fall wegen der bisherigen Diskrepanz von Theorie und Experiment daher sinnvoller, die Dichteverteilung durch eine grobe Abschätzung näherungsweise anzugeben. Wir wählen

$$\delta\varrho(r) \sim \frac{1}{r} \exp(-\lambda r) \qquad \lambda \neq \lambda_{TF} \qquad (6.7)$$

für die Änderung der Ladungsdichte durch die Anwesenheit einer Leerstelle in einem Gitter. Dieser Ansatz erfüllt die Eigenschaften a) und b) unter Vernachlässigung des oszillierenden

Verhaltens. Er erzeugt eine um die Verbindungsachse Leerstelle-Sondenkern axialsymmetrische Verteilung und kann somit einen nicht axialsymmetrischen Feldgradienten $q \neq 0$ nicht erklären.

Die Ladungsdichte (6.7) führt zu einem Potential

$$\phi(r) \sim \frac{1}{r} \exp\{-\lambda r\} \qquad (6.8)$$

und zu den kartesischen Komponenten des elektrischen Feldgradiententensors

$$\phi_{x_i x_j} = \frac{1}{r^3} e^{-\lambda r}\left\{\frac{3x_i x_j}{r^2} - \delta_{ij}\right\} + \frac{\lambda}{r^2} e^{-\lambda r}\left\{\frac{3x_i x_j}{r^2} - \delta_{ij}\right\} + \frac{\lambda^2}{r} \cdot \frac{x_i x_j}{r^2} e^{-\lambda r}, \qquad (6.9)$$

aus denen mit Hilfe von Gl. (2.19) die sphärischen Komponenten sich berechnen lassen.

Die gewählte Form der Dichteverteilungsfunktion $\delta\rho(r)$ hat den Vorteil, daß durch Variation von λ bei konstanten Werten von $V_q^{(2)}(1\alpha)$ sich der Einfluß von Leerstellen in höheren Schalen $j>1$ in einfacher Weise verändern läßt. Dies ist bei der Diskussion recht hilfreich.

7. Berechnete Störfaktoren für ein Leerstellensprungmodell

7.1. Auswahl der Gittertypen und Rechenmethoden

Die hohe Matrixdimension der auszuwertenden Gleichungen erfordert für die numerische Behandlung eine große Speicherkapazität der Rechenmaschinen bzw. lange Rechenzeiten. Bei einer geschickten Wahl des Gittertyps können Probleme mit geringer Matrixdimension untersucht werden, so daß die Rechenzeiten vertretbar sind und trotzdem der unterschiedliche Einfluß von verschiedenen physikalischen Parametern gezeigt werden kann.

Als Beispiele für den Fall, daß einem fluktuierenden elektrischen Feldgradienten, der von diffundierenden Leerstellen hervorgerufen wird, keine statische quadrupolare Wechselwirkung überlagert ist, wählen wir das kubisch-raum- und kubisch-flächenzentrierte Gitter. Substitutionell implantierte Kerne erfahren in diesen Gittern keinen gittertypischen Feldgradienten ($V_q^G=0$). Die hohe Zahl nächster Nachbarn im k.f.z. Gitter macht es aus Matrixdimensionsgründen nicht möglich, mehr als eine diskrete Schale zu behandeln, während im k.r.z. Gitter zwei diskrete Schalen und Umgebung im reduzierten Fall zu einer stochastischen Dimension $D_S=8$ führen, einem mit der Annahme von einem Kernspin I=1 gut zu berechnenden Wert. An diesem Gitter läßt sich der Einfluß aller wichtiger Parameter wie Abschirmkonstante λ, Leerstellen-Sondenkern-Bindungsenergie E_B, Sprungfrequenz ν und Kernlebensdauer τ_N diskutieren. Zusätzlich kann die Gültigkeit von Näherungen, beschrieben in Kap.4, untersucht werden. Wir zeigen am k.r.z. Gitter, wie die Störfaktoren für einen Kernspin I>1 aus diesen Rechnungen näherungsweise bestimmt werden können.

Die Leerstellendiffusion im hexagonal dicht gepackten Gitter ist ein Beispiel für einen zusätzlich nicht verschwindenden gittertypischen Feldgradienten $V_q^G\neq0$, der der fluktuierenden

Wechselwirkung überlagert ist. Die Leerstelle diffundiert u.U. in einem solchen Gitter vorrangig zweidimensional im Unterschied zu den kubischen Gittern.

Der Einfluß eines äußeren, stationären Magnetfelds B≠O wird für einen Kernspin I=1 im einkristallinen k.f.z. Gitter untersucht. Die gemischte Wechselwirkung von elektrischer und magnetischer Art bei gleicher Größenordnung $\|\hat{H}_Q\| \approx \|\hat{H}_M\|$ erfordert die vollständige Diagonalisierung des Gesamt-Liouville-Operators, da $[\hat{H}_Q,\hat{H}_M] \neq O$. Wegen der hohen Rechenzeiten selbst bei Berücksichtigung nur einer Schale wird auf eine numerische Mittelung, die für eine polykristalline Probe erforderlich ist, verzichtet und auf die Ergebnisse am k.r.z. Gitter hingewiesen. Wir vergleichen die berechneten Störfaktoren mit experimentellen Daten. Es ergibt sich gute prinzipielle Übereinstimmung. Es zeigt sich, daß die bisher übliche Auswertung der Experimente korrigiert werden muß.

Die numerischen Rechnungen wurden am Großrechenzentrum Berlin an einem Telefunken-Rechner TR440 durchgeführt. Die differentiellen Störfaktoren erhalten wir durch Diagonalisierung der Matrix $(-i\mathcal{L}+\mathcal{W})$, die integralen durch Inversion von $(p+i\mathcal{L}-\mathcal{W})$. Verwendet wurde das Diagonalisierungsprogramm von Eberlein [57], das in FORTRAN umgeschrieben und gering modifiziert wurde. Die Rechenzeit für eine Diagonalisierung, zum Beispiel k.r.z. Gitter mit zwei Schalen und Umgebung und Kernspin I=1 ($D_L+D_S=72$), betrug ca. 15 min. Die Transformationsmatrizen und Eigenwerte wurden auf ein Magnetband ausgelagert und für jeden Zeitpunkt neu verwendet. Der Zeitbedarf für eine Kurve des differentiellen Störfaktors (30 Zeitpunkte) betrug 60 min. Das Inversionsprogramm wurde von J. Seehusen [58] zur Verfügung gestellt. Die Inversion erforderte für das genannte Beispiel eine Rechenzeit von 5 min.

7.2 Das kubisch raumzentrierte Gitter mit zwei diskreten Schalen (I=1)

Die Diffusion einer Leerstelle um einen Sondenkern wird durch eine Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix der Form (3.10a-3.10d), (3.11) beschrieben. Wir benötigen sie in der Form (3.48), wenn wir einen Potentialansatz $\phi=\phi(r)$ nach Gl. (6.8) verwenden. In Abb.7.1 ist die Matrix $\tilde{M}_1$ angegeben.

		1. Schale				2. Schale			
		1	2	3	4	1	2	3	u
1. Schale	1	Λ	0	0	0	1/8	1/8	1/8	4c
	2	0	Λ	0	0	1/8	1/8	1/8	4c
	3	0	0	Λ	0	1/8	1/8	1/8	4c
	4	0	0	0	Λ	1/8	1/8	1/8	4c
2. Schale	1	ab	ab	ab	ab	0	0	0	4c
	2	ab	ab	ab	ab	0	0	0	4c
	3	ab	ab	ab	ab	0	0	0	4c
	u	4ab	4ab	4ab	4ab	1/2	1/2	1/2	Λ_u

$$a = (1-p_I)/7 \; ; \; b = \exp(-E_B/kT)$$

$$\Lambda = 1-7ab \quad ; \; \Lambda_u = 1-28c$$

$$4c = c_V\,(1-14\,c_V)^{-1}$$

Abb. 7.1 Reduzierte Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1$ für ein k.r.z. Gitter mit zwei diskreten Schalen

Wir nehmen an, daß sich der Sondenkern nicht bewegt ($p_I=0$). Die Abbildungen 7.2 und 7.3 zeigen die entsprechenden reduzierten Matrizen $\tilde{M}_1$ für ein Schalen-Sprungmodell nach Gl. (4.13a-c) und für ein spezielles RPA-Modell (Gl. (4.3))

		1. Schale	2. Schale	u
1. Schale		Λ	1 / 2	16 c
2. Schale		3 ab	0	12 c
u		4 ab	1 / 2	Λ_u

$\Lambda = 1 - 7ab$; $\Lambda_u = 1 - 28c$

Abb. 7.2 Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1^S$ für ein Schalen-Sprungmodell im k.r.z. Gitter

		1. Schale				2. Schale			
		1	2	3	4	1	2	3	u
1. Schale	1	1/4	1/4	1/4	1/4	0	0	0	0
	2	1/4	1/4	1/4	1/4	0	0	0	0
	3	1/4	1/4	1/4	1/4	0	0	0	0
	4	1/4	1/4	1/4	1/4	0	0	0	0
2. Schale	1	0	0	0	0	1/3	1/3	1/3	0
	2	0	0	0	0	1/3	1/3	1/3	0
	3	0	0	0	0	1/3	1/3	1/3	0
	u	0	0	0	0	0	0	0	1

Abb. 7.3 Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1^{RPA}$ für ein RPA-Modell für isotrope Sprünge innerhalb der jeweiligen Schale in einem k.r.z. Gitter

-isotrope Sprünge in der jeweiligen Schale -, mit dem der Einfluß der Richtungsfluktuation innerhalb der ersten und zweiten Schale getrennt untersucht wird. Diese Modelle entsprechen den von Winkler und Gerdau [25] gewählten bezüglich der Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1^{RPA}$ und dem Drehwinkel (α_i; i=1,3 bzw. i=1,4).

7.2.1 Der differentielle Störfaktor $G_{22}(t)$

Die numerischen Ergebnisse für den zeitdifferentiellen Störfaktor $G_{22}(t,eq)=G_{22}(t)$ zeigen die Abb. 7.4 und 7.5. Der Kernspin beträgt I=1, die totale Leerstellenkonzentration c_V=5.0%. Dieser Wert ist deshalb so groß genommen worden, um hohe Aufenthaltswahrscheinlichkeiten in den nahen Schalen zu erreichen. Leerstellen-Sondenkernsprünge werden vernachlässigt (p_I=0). Sowohl der Relaxationsbereich wie auch der Zeitbereich sind in Einheiten der Periodenlänge $t_1=2\pi/\omega_0(\eta)$, bezogen auf den elektrischen Feldgradienten einer Leerstelle auf einem Gitterplatz der ersten Schale, aufgetragen. Die Störfaktoren wurden bis zum Zeitpunkt $t=3t_1$ berechnet, da wir besonders am Beitrag zur Relaxation interessiert sind, der von den maximalen Feldgradienten herrührt. In Abb. 7.4 wurden drei Parametersätze gerechnet. 1.) E_B=0, λ=0, 2.) E_B=0.05 eV, λ=0, E_M=1 eV, 3.) E_B=0, $\lambda=2a^{-1}$ (a = Gitterkonstante). Als a priori Wahrscheinlichkeiten werden die Gleichgewichtswahrscheinlichkeiten $p_{j\alpha}^{eq}$ nach Gl. (3.14) angenommen. Allen Kurven gemeinsam ist, daß drei Relaxationsbereiche unterschieden werden können; ein statischer Bereich $\nu t_1 \ll 1$, ein Übergangsbereich $\nu t_1 \approx 1$ und ein Bereich starker Relaxation $\nu t_1 \gg 1$.

Im statischen Bereich wird $G_{22}(t)$ durch den mit den a priori Wahrscheinlichkeiten $p_{j\alpha}^{eq}$ gebildeten Mittelwert der Störfaktoren für die ersten beiden Schalen gegeben. Eine Erhöhung der

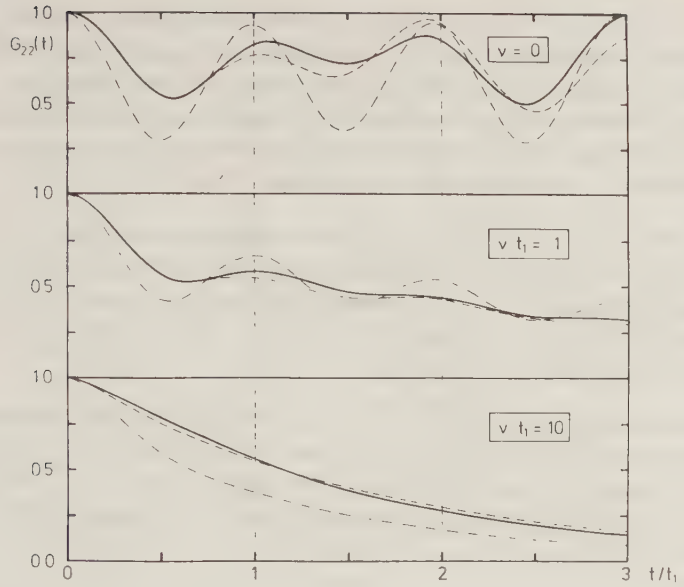


Abb. 7.4 Differentielle Störfaktoren $G_{22}(t)$ für eine polykristalline k.r.z. Probe unter Berücksichtigung von zwei diskreten Schalen

$I=1$, $c_V=5\%$, $E_M=1$ eV, $p_I=0$

$t_i = \frac{8\pi\hbar}{3}\{eQ\cdot V_o(i)\}^{-1}$, a = Gitterkonstante

—— $E_B=0$; $\lambda=0$

-·- $E_B=0.05$ eV; $\lambda=0$

– – – $E_B=0$; $\lambda=2a^{-1}$

Bindungsenergie E_B läßt die erste Schale deutlicher werden, eine Verstärkung der Abschirmung $\lambda>0$ verschiebt den Anteil der zweiten Schale zu niedrigeren Frequenzen und führt zu verändertem Verlauf von $G_{22}(t)$, in dem einzelne Schalen nicht so einfach erkennbar sind.

Erhöhen wir die Temperatur und damit die Sprungfrequenz nach Gl. (3.7), gelangen wir in den engen Übergangsbereich $\nu t_1 \approx 1$.

Die Störfaktoren sind eine komplizierte Überlagerung von gedämpften Einzelfrequenzen. Der Einfluß der Abschirmkonstanten verringert sich, wobei der Einfluß einer Bindungsenergie E_B=0.05 eV deutlich zu erkennen ist. Langreichweitige Effekte höherer Schalen nehmen zunehmend ab. Das Relaxationsverhalten wird durch die erste Schale bestimmt.

Die zusätzliche Angabe der Leerstellenwanderungsenergie E_M für E_B=0.05 eV ist nötig, da eine Erhöhung der Temperatur sowohl die Sprungfrequenz $\exp(-E_M/kT)$ als auch die Sprungwahrscheinlichkeit $b=\exp(-E_B/kT)$ ändert. Die Angabe des Produkts νt_1 reicht in diesem Fall nicht aus.

Für sehr hohe Sprungfrequenzen $\nu t_1 \gg 1$ sehen wir eine vornehmlich exponentielle Dämpfung, die von der Fluktuation in der ersten Schale bestimmt wird (Unabhängigkeit von λ). Nur für kleine Zeiten $t/t_1 \ll 1$ ist eine Abweichung vom exponentiellen Verlauf erkennbar, da $G_{22}(t)$ waagerecht bei t=0 einmündet.

Um die Gültigkeitsgrenzen von Näherungslösungen wie RPA und Schalen- Sprungmodell zur Bestimmung des differentiellen Störfaktors zu erhalten, wurden in Abb. 7.5 die mit den Übergangswahrscheinlichkeitsmatrizen $\tilde{M}_1^{RPA}$ nach Abb. 7.3 für ein 4(3)-Sprungmodell innerhalb der jeweiligen Schale und der Matrix $\tilde{M}_1^S$ nach Abb. 7.2 berechneten Störfaktoren aufgetragen, zusammen mit der exakten Lösung für das bcc-Gitter mit (E_B=0, λ=0, p_I=0, c_V=5.0%). In den drei Relaxationsbereichen ist der Einfluß von Richtungs- und Größenfluktuationen des elektrischen Feldgradienten unterschiedlich. Im Bereich $\nu t_1 \ll 1$, in dem die a priori Wahrscheinlichkeiten den Störfaktor festlegen, stimmen lineares Sprungmodell und exakte Lösung überein, die RPA jedoch führt zu den einzelnen Frequenzen ω_1 und ω_2, wobei p_1^{eq} und p_2^{eq} beliebig zueinander gewählt werden können. Eine Erhöhung der Sprungfrequenz $\nu t_1 \approx 1$ zeigt, daß Fluktuationen sowohl in der Richtung wie im Betrag zu gedämpften Kurven führen. In keinem Fall wird die exakte Lösung näherungsweise durch die Modelle richtig beschrieben. Der Störfaktor ist eine komplizierte Überlagerung aus beiden Prozessen.

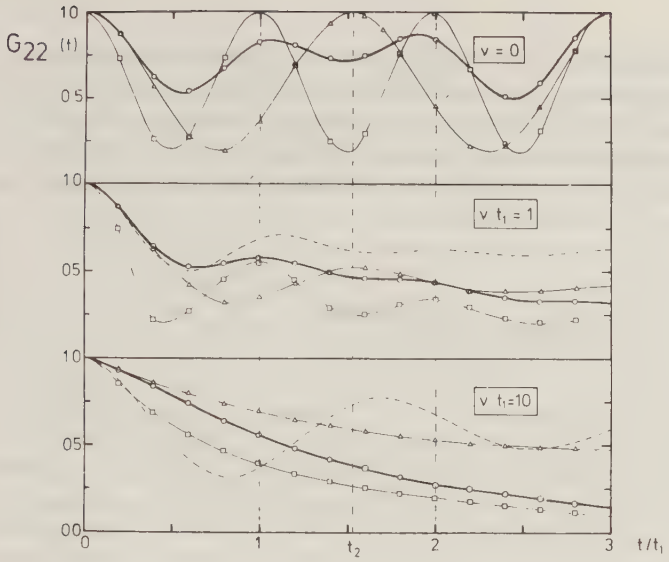


Abb. 7.5 Differentielle Störfaktoren $G_{22}(t)$ für verschiedene Sprungmodelle

$I=1$; $c_V=5\%$; $E_B=\lambda=p_I=0$

$$t_i = \frac{8\pi\hbar}{3}\{eQ\cdot V_o(i)\}^{-1}$$

○ k.r.z. Gitter mit zwei diskreten Schalen $\tilde{M}_1$

– – – in Näherung des Schalen-Sprungmodells $\tilde{M}_1^S$

□ 4-Sprungmodell innerhalb der ersten Schale } $\tilde{M}_1^{RPA}$

△ 3-Sprungmodell innerhalb der zweiten Schale }

Im Grenzfall $\nu t_1 >> 1$ stimmt der lineare Mittelwert $\langle \mathfrak{A} \rangle = 0$ des RPA-Modells aus exakter Rechnung mit dem k.r.z.-Gitter überein, während das lineare Sprungmodell zu $\langle \mathfrak{A} \rangle \neq 0$ führt. Es bildet sich nach Gl. (4.20) eine mittlere Quadrupolwechselwirkung mit der Frequenz $\langle\omega\rangle$ aus, die zusätzlich eine Dämpfung

erfährt. Die exakte Lösung kann nur durch das RPA-Modell genähert werden. Es zeigt sich wie in Abb. 7.4, daß für hohe Sprungfrequenzen die Relaxation im wesentlichen durch Richtungsfluktuation in der ersten Schale bestimmt wird. Nur für kleine Zeiten muß auf den Einfluß höherer Schalen geachtet werden.

7.2.2. Die integralen Störfaktoren $G_{kk}(\infty)$ und $G^{qq}_{kk}(\infty)$

Die Berechnung der integralen Störfaktoren erfordert die numerische Behandlung von Gl. (3.50) zusammen mit der Matrix $\tilde{M}_1$ aus Abb. 7.1. Es wurde $E_B=0$; $p_I=0$; $\lambda=0$; $c_V=5.0\%$ wie für die Behandlung der differentiellen Störfaktoren angenommen und die Lebensdauer des isomeren Kernzustandes τ_N und die Sprungfrequenz ν variiert.

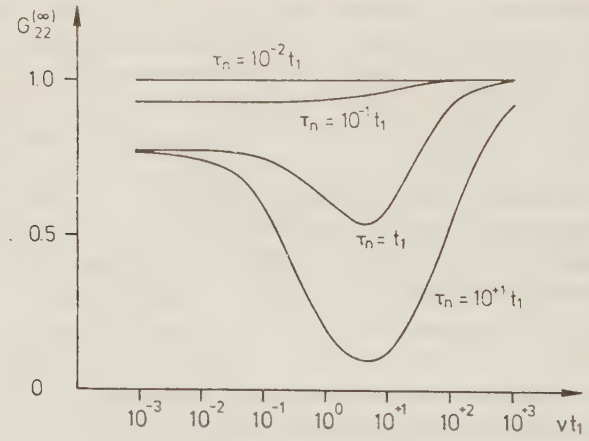


Abb. 7.6 Integraler Störfaktor $G_{22}(\infty)$ für eine polykristalline k.r.z.-Probe unter Berücksichtigung von zwei diskreten Schalen

$I = 1$, $c_V = 5\%$, $E_B = \lambda = p_I = 0$

$t_1 = \frac{8}{3}\hbar \left[eQ \cdot V_0(1)\right]^{-1}$

Die Abb. 7.6 zeigt die numerischen Ergebnisse für $pG_{22}(p,eq) = G_{22}(\infty)$ in einer dimensionslosen Auftragung νt_1 und $\omega_o(1)\tau_N$ mit $t_1 = \frac{2\pi}{\omega_o(1)}$ für eine polykristalline Probe . Wir sehen das gleiche Relaxationsverhalten wie in der differentiellen Form in Abb. 7.4 und 7.5. Je größer die Lebendauer τ_N ist, umso stärker kann sich der Einfluß der Relaxation auswirken. Der Grenzwert für niedrige Sprungfrequenzen $\nu t_1 << 1$ wie für hohe Frequenzen $\nu t_1 >> 1$ entspricht der Gl. (4.5), dem statischen Mittelwert, gebildet aus den Störfaktoren der Einzelschalen, bzw. dem Störfaktor einer gemittelten Wechselwirkung nach Gl. (4.22).

Ein Vergleich mit RPA-Modellen zeigt das gleiche prinzipielle Verhalten, vergl. z.B. Bosch und Spehl [27]; ein Schalen-Sprungmodell, wie es für den differentiellen Störfaktor verwendet wurde, liefert gute Ergebnisse für den Bereich $\nu t_1 << 1$, jedoch, wie nach Gl. (4.22) zu erwarten ist, falsche Störfaktoren im Bereich hoher Sprungfrequenzen.

Am Beispiel des integralen Störfaktors soll die Bedeutung der diskreten Struktur innerhalb der einzelnen Schalen untersucht werden. Die Annahme einer homogenisierten Schale, in der in jeder beliebigen Richtung ein Leerstellenplatz vorliegt und in der keine Richtungsinhomogenitäten angenommen werden, führt nach Gl. (4. 9) zu Störfaktoren $G_{kk}(t)$ und $G_{kk}(\infty)$, die unabhängig von der Richtungsquantenzahl q sind. Die diskrete Struktur macht sich in einem q-abhängigen Störfaktor bemerkbar.

In Abb. 7.7 sind die integralen Störfaktoren G_{kk}^{qq} (k=1,2; q=-k, ...,+k) für einen Sondenkern in einem einkristallinen k.r.z. Gitter aufgetragen mit den gleichen Parameterwerten wie in Abb. 7.6 (E_B=0, p_I=0, λ=0, c_V=5.0%), jedoch mit einer sehr hohen Lebensdauer τ_N, um den Effekt besonders deutlich zu machen. Das gewählte Koordinatensystem fällt mit den Haupt-

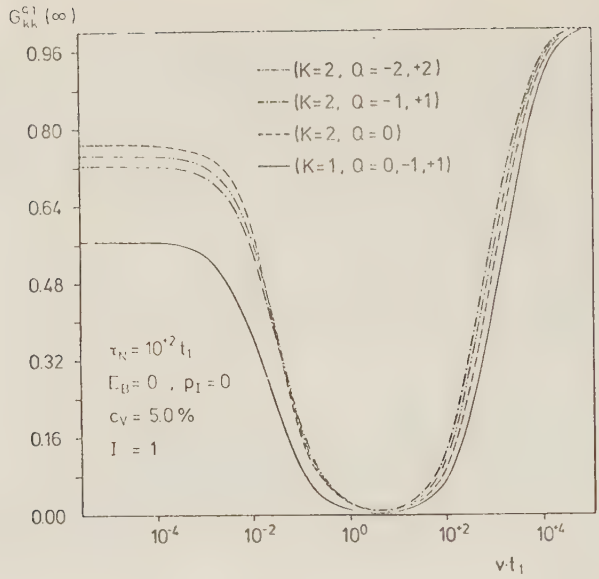


Abb. 7.7 Integrale Störfaktoren $G_{kk}^{qq}(\infty)$ für eine einkristalline k.r.z. Probe unter Berücksichtigung von zwei diskreten Schalen

$I=1$, $c_V=5\%$, $E_B=\lambda=p_I=0$, $\tau_N=10^{+2}t_1$

$t_1 = \frac{8\pi\hbar}{3}\{eQ\cdot V_o(1)\}^{-1}$

achsenrichtungen des Kristalls zusammen. Wir bemerken, daß der integrale Störfaktor $G_{11}^{qq}(\infty)$ nicht von q abhängt, jedoch $G_{22}^{qq}(\infty)$ schwach q-abhängig ist. Je größer die Zahl nächster Nachbarn ist, umso geringer wird die q-Abhängigkeit von $G_{22}^{qq}(\infty)$. Für ein kubisch flächenzentriertes Gitter kann man daher in guter Näherung den Unterschied von polykristalliner und einkristalliner Probe vernachlässigen.

7.2.3 Näherungslösung für Spinwerte I>1

Die hohe Matrixdimension von $-i\tilde{\mathcal{L}}+\tilde{\mathcal{W}}$ läßt es für I>1 nicht zu, Gl. (3.49) durch Matrixdiagonalisierung auszuwerten. Wir haben die Reihenentwicklung Gl. (4.17) benützt, um bei niedrigen Sprungfrequenzen auch für höhere Spinwerte I>1 die differentiellen Störfaktoren zu berechnen. Die Rechenzeiten werden allerdings sehr hoch; z.B. für I=5/2 konnte nur bis zum linearen Term von Gl. (4.17) gerechnet werden. Das Ergebnis zeigt die Abb. 7.8 für ein polykristallines kubisch raumzentriertes Gitter mit der Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1$ aus Abb. 7.1 und $E_B=0$, $p_I=0$, $\lambda=0$. Der Störfaktor $G_{22}(t)$ für $\nu=0$ setzt sich für I=5/2 aus einer mit den a priori Wahrscheinlichkeiten $p_{j\alpha}^{eq}$ gemittelten Überlagerung von Kosinusfunktionen von Vielfachen

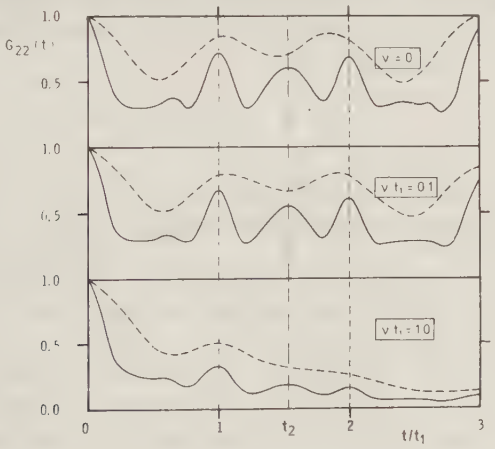


Abb. 7.8 Näherungslösungen für eine polykristalline k.r.z. Probe unter Berücksichtigung von zwei diskreten Schalen
$c_V=5\%$, $E_B=\lambda=p_I=0$
—— I=5/2; $t_i(5/2) = \frac{40\pi\hbar}{3}\{eQ\cdot V_o(i)\}^{-1}$
– – I=1; $t_i(1) = \frac{8\pi\hbar}{3}\{eQ\cdot V_o(i)\}^{-1}$

der Quadrupolfrequenzen $\omega_0(j), j=1,2$ zusammen. Es kommt zu einer Verschmierung der einzelnen Frequenzanteile. Sprungfrequenzen $\nu>0$ führen zu einer Dämpfung der Gesamtfunktion, überlagert von einer Ausmittelung der Einzelfrequenzanteile. Die gleiche Rechnung wurde für I=1 wiederholt (gestrichtelte Kurve). Wir erkennen das gleiche qualitative Verhalten. Ein Vergleich mit Abb. 7.5 zeigt, daß die Reihenentwicklung die Ausmittelung der Einzelfrequenzen recht gut erfaßt, jedoch zu einer zu starken Dämpfung der Gesamtfunktion führt.

Eine Korrektur kann nun dadurch geschehen, daß aus den Rechnungen für I=1 der unterschiedliche Dämpfungsfaktor der exakten Lösung und der Näherungslösung entnommen und damit der differentielle Störfaktor für I=5/2 entsprechend korrigiert wird. Im Bereich $\nu t_1 >> 1$ sind alle Einzelfrequenzen ausgemittelt. Die Störfaktoren für Spinwerte I>1 ergeben sich näherungsweise durch (4.20) und (4.22) , deren Auswertung nicht durch Dimensionsprobleme erschwert wird.

7.3 Das ebene hexagonale Gitter mit zwei diskreten Schalen und einem gittertypischen Feldgradienten $V_q^G \neq 0$

Ein hexagonal-dicht-gepacktes Gitter ist ein Beispiel für einen Gittertyp mit einem nicht verschwindenden gittertypischen Feldgradienten $V_q^G \neq 0$. Die Grundebene hat die Struktur nach Abb. 3.2 . Der Einfachheit halber beschränken wir die Diffusionsbewegung der Leerstelle auf die basale Ebene (zweidimensionale Diffusion). Der Sprungprozeß wird durch die Matrix M_1 aus Abb. 3.3 beschrieben. Dieses ebene Modell stellt eine starke Vereinfachung der wirklichen Verhältnisse in einem idealen hcp-Gitter dar und ist nur für ein Verhältnis der Gitterkonstanten $c/a>(8/3)^{1/2}$ anwendbar. Wir nehmen willkürlich an, daß der git-

tertypische Feldgradient halb so groß ist wie der Feldgradient, der von einer Leerstelle in der ersten Schale hervorgerufen wird. Er ist rotationssymmetrisch um die c-Achse ($V_q^G=0$ $(q\neq 0)$). Der allgemeine Feldgradient, der sich zusammensetzt aus V_q^G-$V_q(j\alpha)$, ist nicht axialsymmetrisch.

7.3.1 Der differentielle Störfaktor $G_{22}(t)$

Die polykristallinen differentiellen Störfaktoren $G_{22}(t,eq) = G_{22}(t)$ für einen Kernspin I=1 zeigt die Abb. 7.9. Die Parameterwerte sind $E_B=0$, $p_I=0$, $\lambda=0$, $c_V=5.9\%$. Eine Zeitskala, wie sie im kubischen Gitter sinnvoll ist, vergl. Abb. 7.4, kann hier nur bedingt eingeführt werden. Wir normieren t auf eine Zeit t_1, die Periode des fluktuierenden Anteils an der Quadrupolfrequenz für eine Leerstelle in der ersten Schale.

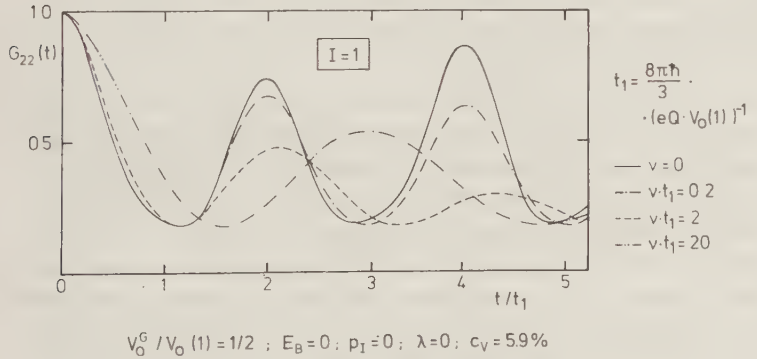


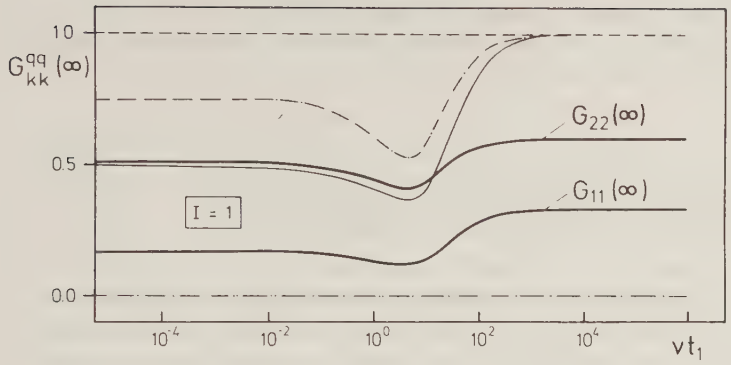
Abb. 7.9 Differentielle Störfaktoren $G_{22}(t)$ für eine polykristalline ebene hexagonale Probe unter Berücksichtigung von zwei diskreten Schalen und zweidimensionaler Diffusion

Die gewählten Sprungfrequenzen ν=0, 0.2, 2, 20 t_1^{-1} überstreichen den gesamten Relaxationsbereich. Der Verlauf der differentiellen Störfaktoren entspricht dem am kubisch-raumzentrierten Gitter diskutierten Verhalten. Anders ist das Ergebnis für hohe Sprungfrequenzen. Es bildet sich eine mittlere Wechselwirkungsfrequenz $\langle\omega\rangle$ aus, die $G_{22}(t)$ bestimmt, wie es der Näherungsformel Gl. (4.20) entspricht.

7.3.2 Die integralen Störfaktoren $G_{kk}(\infty)$ und $G_{kk}^{qq}(\infty)$

Die Frage, wie das Verhältnis $V_o^G/V_o(1)$ die Ergebnisse verändert, untersuchen wir am integralen Störfaktor. Die Grenzfälle $V_o^G >> V_o^{(2)}(1)$ und $V_o^G << V_o(1)$ zeigen die Abb. 7.10 und 7.11. Sondenkern-Leerstellen-Bindungsenergie und Platzwechsel wurden vernachlässigt (E_B=p_I=0). Die Leerstellenkonzentration beträgt c_V=5.3%. Wir haben zu den Störfaktoren für die polykristalline Probe auch die Werte $G_{kk}^{qq}(\infty)$ für die einkristalline Probe in die Abbildungen eingetragen, um den Einfluß für jedes q getrennt zu zeigen.

In Abb. 7.10 ($V_o^G >> V_o(1)$) bestimmt der gittertypische Feldgradient den Wert des integralen Störfaktors für $\nu\to\infty$. Es ist ein Übergangsbereich zu erkennen, der durch die Fluktuationen der Leerstellen hervorgerufen wird, da die Kurven G_{22}^{+2+2} und G_{11}^{00} q-abhängig sind. Unempfindlich gegenüber dem Relaxationsprozeß sind die Störfaktoren $G_{22}^{\pm1\pm1}$=$G_{11}^{\pm1\pm1}$=0 und G_{22}^{00} = 1. Man beachte, daß der Grenzwert $\nu\to0$ nicht durch den zum gittertypischen Feldgradienten zugehörigen integralen Störfaktor gegeben wird, wie die Abweichung vom rechtsseitigen Grenzwert zeigt. Wird die Wechselwirkung des Sondenkerns mit seiner Umgebung vorrangig durch den fluktuierenden Leerstellensprungprozeß bestimmt ($V_o^G << V_o$), Abb. 7.11), ist auch der Störfaktor $G_{22}^{\pm1\pm1}(\infty)$ und $G_{11}^{\pm1\pm1}(\infty)$ abhängig vom Wert der Sprungfrequenz ν. Der gittertypische Feldgradient modifiziert somit nur die q=±1 Komponen-



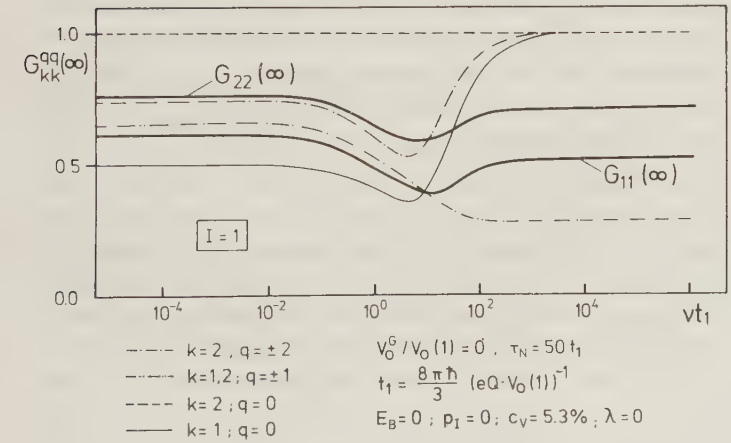


Abb. 7.10 und 7.11 Integrale Störfaktoren $G_{kk}^{qq}(\infty)$ und $G_{kk}(\infty)$ für eine ebene hexagonale Probe unter Berücksichtigung von zwei diskreten Schalen und zweidimensionaler Diffusion

ten des Evolutionsoperators; die polykristallinen Störfaktoren sind damit entsprechend verändert. Die Grenzwerte $\nu t_1 \ll 1$ müssen nach Gl. (4.19) und (4.22) berechnet werden und sind durch die a priori Wahrscheinlichkeitsverteilung $p_{j\alpha}^{eq}$ bestimmt.

7.4 Das kubisch flächenzentrierte Gitter mit einer diskreten Schale und einem externen Magnetfeld B≠0

In einem unverzerrten kubisch flächenzentrierten Gitter erfährt ein substitutionell implantierter Sondenkern keinen gittertypischen Feldgradienten ($V_q^G=0$). Die differentiellen Störfaktoren zeigen einen ganz ähnlichen Verlauf wie für ein kubisch-raumzentriertes Gitter Abb. 7.4 und 7.5. Die Abhängigkeit der $G_{kk}^{qq}(t)$ von q kann wegen der großen Anzahl nächster Nachbarn (Z=12) besonders für hohe Sprungfrequenzen vernachlässigt werden (vergl. Abb. 7.7). Berücksichtigen wir nur eine diskrete Schale, entspricht die statische Mittelung über alle möglichen Richtungslagen (1α) näherungsweise der polykristallinen Mittelung. Diese Aussage ist wichtig, wenn wir ein externes Magnetfeld B_o an eine polykristalline Probe anlegen. Die Störfaktoren unterscheiden sich nur gering von denen einer einkristallinen Probe. Der hohe Rechenaufwand durch numerische Mittelung über alle Monokristallagen kann vermieden werden.

Die reduzierte Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1$ (Gl. 3.48) zeigt Abb. 7.12. Es wird nur eine diskrete Schale berücksichtigt und für alle Rechnungen eine Gleichgewichts- a priori Wahrscheinlichkeitsverteilung p_j^{eq} zum Zeitpunkt $t=t_o$ angenommen. Der Vergleich mit der Gl. (5.5) zeigt, daß die dort verwendete Übergangsmatrix aus $\tilde{M}_1^S$ durch die Summation über alle diskreten Gitterplätze nach Gl. (4.13b) hervorgeht.

		1. Schale						
		1	2	3	4	5	6	u
1. Schale	1	Λ	ab	0	ab	ab	ab	7c
	2	ab	Λ	ab	0	ab	ab	7c
	3	0	ab	Λ	ab	ab	ab	7c
	4	ab	0	ab	Λ	ab	ab	7c
	5	ab	ab	ab	ab	Λ	0	7c
	6	ab	ab	ab	ab	0	Λ	7c
	u	7ab	7ab	7ab	7ab	7ab	7ab	Λ_u

$a = (1 - p_I)/11$; $b = \exp(-E_B/kT)$

$\Lambda = 1 - 11\,ab$; $\Lambda_u = 1 - 42\,c$

$6\,c = c_V\,(1 - 12\,c_V)^{-1}$

Abb. 7.12 Reduzierte Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix $\tilde{M}_1$ für ein k.f.z. Gitter mit einer diskreten Schale

7.4.1 Die differentiellen Störfaktoren $G_{22}^{qq}(t)$

Berechnet wurden die differentiellen Störfaktoren $G_{22}^{qq}(t,eq)=G_{22}^{qq}(t)$ für einen Sondenkern in einer monokristallinen Probe, die sich in einem externen Magnetfeld B_o längs einer Hauptachse des Kristalls befindet. B_o ist so gewählt, daß die zugehörige Larmorfrequenz $\omega_L = -g \cdot \mu_n \cdot B_o$ in der gleichen Größenordnung wie die Quadrupolfrequenz ist, die von einer Leerstelle in der ersten Schale hervorgerufen wird. Zwar führen die Grenzfälle $\omega_Q(1) \gg \omega_L$ zu einfach zu behandelnden Näherungsrechnungen, interessanter ist jedoch oft der Fall der simultanen magnetischen und quadrupolaren Wechselwirkung vergleichbarer Stärke.

Die Abb. 7.13 zeigt für ein Frequenzverhältnis $\omega_L/\omega_o(1)=0.8$ die differentiellen Störfaktoren $G_{22}^{qq}(t)$. Leerstellen-Sondenkern-Bindungsenergie und Platzwechsel wurden vernachlässigt ($E_B=p_I=0$).

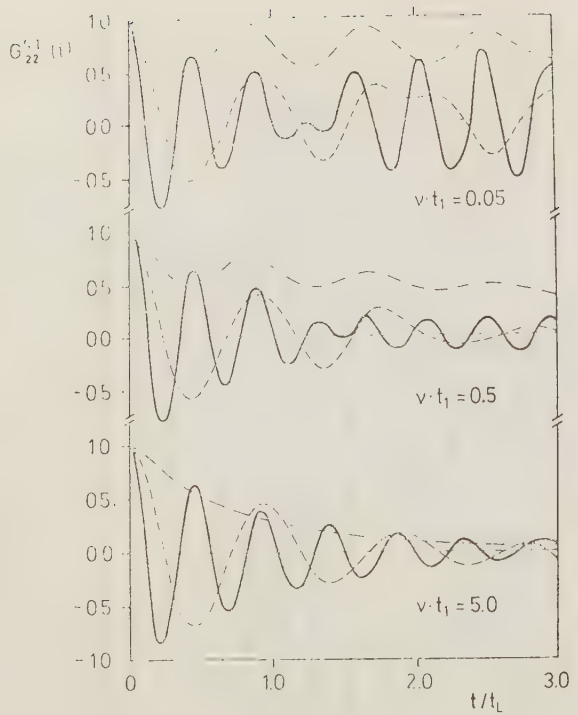


Abb. 7.13 c_V=5%, $E_B=\lambda=p_I=0$

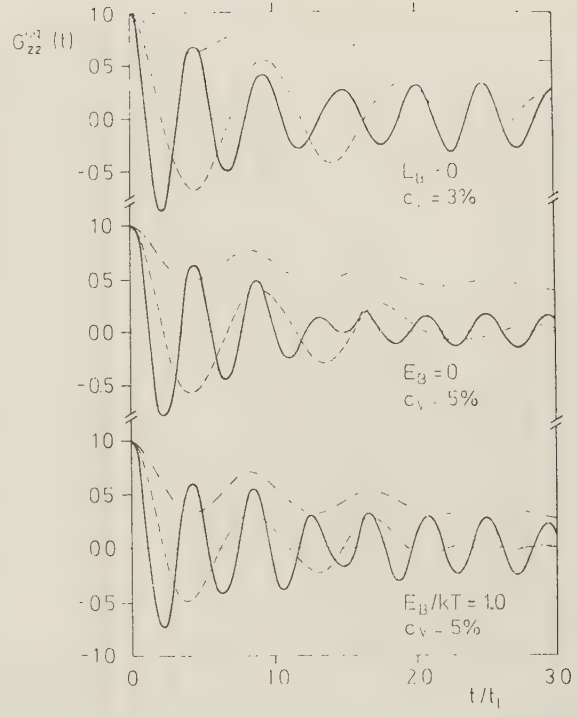


Abb. 7.14 $\lambda=p_I=0$, $\nu t_1=0.5$

Differentielle Störfaktoren $G_{22}^{qq}(t)$ für eine k.f.z. Probe in einem äußeren Magnetfeld B_0

$t_1 = \frac{8\pi\hbar}{3}\{eQ\cdot V_0(i)\}^{-1}$; $t_L = 2\pi\hbar\{g\mu_N B_0\}^{-1}$, I=1,

Die Leerstellenkonzentration beträgt 5%. Wir unterscheiden die drei Relaxationsbereiche $\nu t \lessgtr 1$, wie sie im k.r.z. Gitter in (7.2.1) diskutiert worden sind. Der Störfaktor $G_{22}^{oo}(t)$ zeigt das gleiche qualitative Verhalten wie der Störfaktor $G_{22}(t)$ in Abb. 7.4 für eine polykristalline k.r.z. Probe. Der Einfluß des Magnetfeldes ist wegen (2.20) mit q=0 gering. An der Kurvenform von $G_{22}^{oo}(t)$ läßt sich deshalb der Relaxationsbereich ablesen.

Die Störfaktoren $G_{22}^{qq}(t)$ q>0 sind eine komplizierte Überlagerung von mehreren Frequenzen und Dämpfungskonstanten. Einfache Näherungsformeln lassen sich außer für $\nu t_1 >> 1$ nicht angeben.

Interessant für die Auswertung von experimentellen Ergebnissen ist es, das Langzeitverhalten in der verschiedenen Relaxationsbereichen zu betrachten. Während für hohe Sprungfrequenz $\nu t_1 >> 1$ die Amplituden der Störfaktoren im gesamten Zeitbereich näherungsweise exponentiell abnehmen, ist das für $\nu t_1 << 1$ nicht der Fall. Im Übergangsbereich erkennen wir eine starke Dämpfung für kurze Zeiten und eine sehr geringe für lange Zeiten. Höhere Feldgradienten bei gleichem νt_1 und ω_L verschieben den Zeitpunkt des Übergangs von starker zu schwacher Dämpfung zu kürzeren Zeiten, niedrigere Feldgradienten zu größeren Zeiten hin. Der Effekt wird für größere Werte von q deutlicher, da die zugehörigen Frequenzen $q \cdot \omega_L$ gegenüber ω_o(1) zunehmen und man die Störfaktoren $G_{kk}^{qq}(t)$ immer besser durch die Überlagerung aus

$$G_{kk}^{qq}(t) = e^{-iq\omega_L t} G_{kk}^{oo}(t) \qquad (7.1)$$

annähern kann.

Die Gl. (7.1) moduliert nur die Amplituden des Störfaktors für einen Kern im Magnetfeld B_o ohne zusätzliche Quadrupolwechselwirkung. Das wegen der Nichtvertauschbarkeit von $\hat{H}_Q(j\alpha)$ und $\hat{H}_M$ veränderte gemeinsame Eigenfrequenzspektrum bleibt unberücksichtigt.

Für hohe Sprungfrequenzen $\nu t_1 >> 1$ wird der Störfaktor $G_{kk}^{oo}(t)$ nach Gl. (4.20a) und (4.20b) näherungsweise durch eine Exponentialfunktion gegeben, da der lineare Mittelwert von $\langle \mathcal{H} \rangle = 0$ ist. Es werden keine zusätzlichen Frequenzen der magnetischen Frequenzen $q\omega_L$ überlagert (Fall $\nu t_1 = 5$ in Abb. 7.13).

Für Sprungfrequenzwerte $\nu t_1 << 1$ setzt sich der differentielle Störfaktor aus einer Überlagerung von Störfaktoren zusammen, die aus der gemischten Wechselwirkung von Magnetfeld und einem elektrischen Feldgradienten für einen Leerstellenplatz berechnet werden müssen. Gl. (7.1) ist nicht anwendbar. Der Einfluß höherer Schalen nimmt für kleine ν zu, so daß ein vielfältiges Frequenzspektrum den Störfaktor bestimmt.

Die Abhängigkeit des Störfaktors im Übergangsbereich $\nu t_1 \approx 1$ von der Leerstellenkonzentration c_V und der Leerstellen-Sondenkern-Bindungsenergie E_B untersuchen wir in Abb. 7.14. Ein kleiner Wert von c_V vergrößert $G_{22}^{oo}(t)$. Die Amplituden des schwachen Dämpfungsanteils nehmen zu, während für kurze Zeiten die Kurven fast unverändert bleiben.

Eine Erhöhung der Bindungsenergie bewirkt (vergl. Abb. 7.4) eine deutliche Ausprägung des Einflusses der ersten Schale. $G_{22}^{oo}(t)$ wird zu kleineren Werten verschoben, die Amplituden des schwach gedämpften Anteils nehmen wie bei veränderter Leerstellenkonzentration zu.

Alle drei Fälle in Abb. 7.14 unterscheiden sich im Frequenzspektrum. Die Nullagen sind für kurze Zeiten zueinander verschoben. Erst für höhere Zeiten dominiert die magnetische Wechselwirkungsfrequenz $q\omega_L$.

7.4.2 Vergleich mit einem Experiment

Im Implantationsexperiment von Hempel et al. [59] wird mit der Methode der zeitdifferentiellen gestörten Winkelverteilung (TDPAD) nach Kernreaktion die Temperaturabhängigkeit der Hyperfeinwechselwirkung von ^{69}Ge (I=9/2, τ_N=4.2 s) in polykristallinem, kubischem $AuGa_2$ untersucht. Das externe Magnetfeld beträgt 8.8 kOe. Beobachtet wird die Anisotropie der γ-Strahlung senkrecht zum Magnetfeld

$$R(t) = \frac{W(\Theta=0°,t)-W(\Theta=\frac{\pi}{2},t)}{W(\Theta=0°,t)+W(\Theta=\frac{\pi}{2},t)} \qquad (7.2)$$

(Θ Winkel zwischen Teilchenstrahl und Zähler).
Bei nicht vorhandener Quadrupolwechselwirkung ist $R(t) \sim G_{22}^{22}(t)$. Die gemessenen Kurven zeigt Abb. 7.15. Einem deutlich periodischen Verhalten ist eine angenäherte exponentielle Dämpfung überlagert. Eine Anpassung durch $R(t)=AG_{22}^{22}(t)e^{-\lambda_2 t}$ verlangt eine Temperaturabhängigkeit für λ_2 und für die Anfangsanisotropie A. Während für λ_2 ein Arrheniusgesetz Gl. (3.7) angenommen wird, wird A(T) nicht erklärt.

Das physikalische Modell ist das folgende: Der implantierte Kern ^{69}Ge ist zur Zeit t=0 umgeben von Defekten erhöhter Konzentration. Je höher die Temperatur wird, desto schneller verlassen sie die nähere Umgebung des Kerns und verteilen sich statistisch um den Sondenkern entsprechend der Leerstellenkonzentration c_V. Die Anfangswahrscheinlichkeiten sind nicht die Gleichgewichtswahrscheinlichkeiten $p_{j\alpha}^{eq}$, sondern hängen von den speziellen Parametern des Implantationsexperiments ab (vergl. Abb. (4.1-4.4)).

Wie sich die differentiellen Störfaktoren $G_{kk}^{qq}(t)$ von den mit einer Gleichgewichtsverteilung $p_{j\alpha}^{eq}$ gemittelten Störfaktoren $G_{kk}^{qq}(t,eq)$ unterscheiden, kann für den Grenzfall hoher Tem-

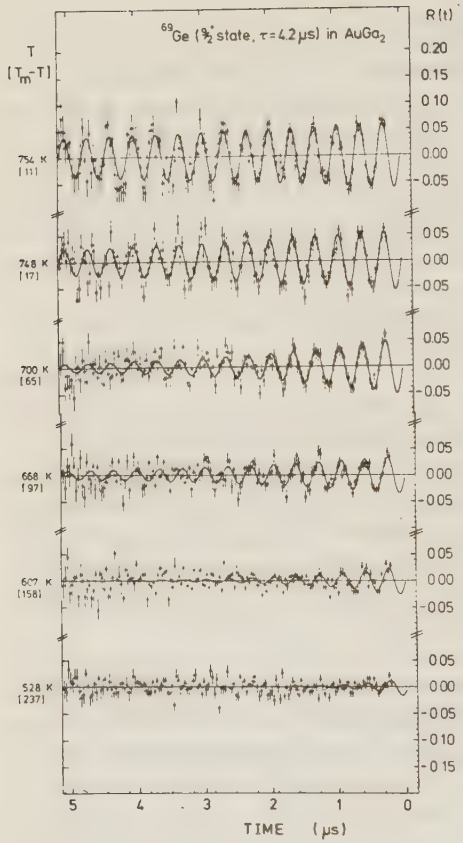


Abb. 7.15
Gemessene Anisotropie R(t) für ^{69}Ge in $AuGa_2$ in einem äußeren Magnetfeld B_0=8.8 kOe nach [57]

peraturen näherungsweise in analytischer Form angegeben werden. Wegen der hohen Sprungfrequenz $\nu t_1 >> 1$ müssen nur Leerstellen in der ersten Schale berücksichtigt werden. Die Ersetzung von M_1 durch M_1^{RPA} ist in diesem Bereich eine gute Näherung. Wir erhalten für eine richtungsunabhängige Anfangsverteilung $p_1 = z p_{j\alpha}$ den Zusammenhang

$$G_{kk}^{qq}(t,t_o) = \frac{p_1(t_o)}{p_1^{eq}} G_{kk}^{qq}(t-t_o,eq) - \frac{p_1(t_o)-p_1^{eq}}{p_1^{eq}} e^{-(\nu+iq\omega_L)(t-t_o)} - \frac{p_1(t_o)-p_1^{eq}}{p_1^{eq}} \cdot \nu \cdot \int_{t_o}^{t} G_{kk}^{qq}(t-\tau,eq) e^{-(\nu+iq\omega_L)\tau} d\tau \quad . \tag{7.3}$$

Der für die Untersuchung der Zeitabhängigkeit der Amplitude wichtige Störfaktor $G_{kk}^{oo}(t)$ wird für $\nu t_1 >> 1$ näherungsweise (vergl. Abb. 7.14 und Gln. (4.20) und (4.21))

$$G_{kk}^{oo}(t,eq) \approx e^{-\lambda_k t} \quad ; \quad \lambda_k = \frac{\langle \omega_Q^2 \rangle_k}{\nu} \quad . \tag{7.4}$$

Damit erhalten wir für (7.3)

$$G_{kk}^{oo}(t,t_o) = \frac{f_k p^{eq} - p_1(t_o)}{(f_k-1)\, p_1^{eq}} e^{-\lambda_k (t-t_o)} + \frac{p_1(t_o)-p_1^{eq}}{(f_k-1)\, p_1^{eq}} e^{-\lambda_k f_k (t-t_o)}$$

$$f_k = \frac{\nu}{\lambda_k} = \langle \omega_Q^2 \rangle_k^{-1} \nu_o^2 e^{-2E_M/kT} \quad . \tag{7.5}$$

Es werden zwei Exponentialfunktionen überlagert mit stark unterschiedlichen Dämpfungskonstanten λ_k und ν. Das Verhältnis f_k ist im allgemeinen nicht nur abhängig von der Temperatur T und der Leerstellenwanderungsenergie E_M, sondern auch von der erhöhten Leerstellenkonzentration $p_1 >> p_1^{eq}$ in der Nähe der Sonde [14]. Besonders bei niedrigeren Temperaturen muß die Sprungfrequenz ν entsprechend korrigiert werden.

In einem Experiment, in dem $f_k >> 1$ angenommen werden kann, ist der gemessene Störfaktor durch mangelnde Zeitauflösung um t=0 allein durch den ersten Summanden von Gl. (7.5) gegeben. Extrapolation der Meßkurve nach $t_o = 0$ ergibt

$$G_{22}^{oo}(t=o, Exp.) = \frac{f_k p_1^{eq} - p_1(t_o)}{(f_k-1)\, p_1^{eq}} = A(E_M, T) \tag{7.6}$$

eine temperaturabhängige Anisotropie A, wie sie im Experiment in Abb. 7.15 ebenfalls zu sehen ist. Für höhere Temperaturen nimmt A zu und erreicht für $T\to\infty$ den Wert Eins. Dies entspricht der Anisotropie in der flüssigen Phase.

Ein anderer Effekt verfälscht den Wert des Störfaktors, der aus den Meßkurven durch Anpassung mit einer Exponentialfunktion gewonnen wird. Im Übergangsbereich der Relaxation $\nu t_1 \approx 1$ zeigen die Abb. 7.13 und 7.14, daß allein bei der Berücksichtigung nur des schwach gedämpften Anteils in der genannten Form man eine zu geringe Anfangsanisotropie erhält. Eine Verringerung der Leerstellenkonzentration c_V=3% (Abb. 7.14) vergrößert den so bestimmten Wert von A. Dies entspricht höheren Temperaturen, da die Ausheilung der Defekte beschleunigt wird. Der Effekt zeigt die beobachtete Temperaturabhängigkeit.

Weitere experimentelle Untersuchungen zur Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der Anfangsanisotropie A werden von der Erlanger Gruppe [60] zusammen mit Schatz et al. [61] in Stony Brook, New York und im Hahn Meitner Institut [62] durchgeführt. Die von Schatz et al. [61] gegebene theoretische Interpretation der Meßergebnisse gewinnen wir aus der Gl. (3.28), indem wir eine Übergangswahrscheinlichkeitsmatrix annehmen, in der nur Sprünge aus der ersten Schale in die Umgebung zugelassen sind. Ein Rücksprung in die erste Schale ist nicht erlaubt (sehr kleine Gleichgewichtskonzentration c_V). Als a priori Verteilung wird $p_1(t_o)=1$ angenommen, die Gleichgewichtsverteilung ist $p_1^{eq}=0$, $p_u^{eq}=1$. Wir erhalten für eine polykristalline Probe

$$G_{RR}(t,t_o) = e^{-\nu t}\, G_{kk}^{poly}(\omega_Q(1),t) + \nu \int_o^t e^{-\nu\tau}\, G_{kk}^{poly}(\omega_Q(1),\tau)\, d\tau$$

und im Grenzfall $\nu t \gg 1$ den integralen Störfaktor (7.7)

$$\bar{G}_{kk}(\infty) = p\, G_{kk}^{poly}(p\, t_o) \quad ; \quad D = \nu_o^{-1}\, e^{+E_M/kT} \quad ,$$

der mit der von Schatz et al. [61] angegebenen Formel übereinstimmt. Eine qualitative Auswertung der Experimente mit der in dieser Arbeit entwickelten Theorie wird in Zusammenarbeit mit den beiden experimentellen Gruppen zur Zeit durchgeführt und konnte aus Zeitgründen noch nicht abgeschlossen werden.

7.5 Zusammenfassung der Ergebnisse des Kap.7

Drei Relaxations-Bereiche können unterschieden werden:

a) Schwach relaxierender Bereich:
Gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus einer statischen Mittelung der Störfaktoren für die einzelnen Leerstellen-Plätze mit einer dem Mittelwert überlagerten exponentiellen Dämpfung
Starke Abhängigkeit der Ergebnisse von der Anfangsverteilung $p_j(o)$
Wesentliche Beeinflussung der Ergebnisse durch höhere Schalen
Verstärkung des Einflusses der ersten Schale durch eine Leerstellen-Sondenkern-Bindungsenergie $E_B>0$
Gute Näherungslösungen durch das Schalen-Sprungmodell
Näherungsmöglichkeit für hohe Kernspinwerte

b) Übergangsbereich:
Komplizierte Überlagerung von Frequenzen und Dämpfungskonstanten
Numerisch und analytisch (auch näherungsweise) schwer zu behandeln

c) Stark fluktuierender Bereich:
Gute Beschreibung der Ergebnisse durch eine statische Mittelung der Liouville-Operatoren $\hat{H}_{j\alpha}$ zu einer einzigen Wechselwirkung $\langle \mathcal{H} \rangle$ und durch eine zu $\nu^{-1}\{\langle \mathcal{H}^2 \rangle - \langle \mathcal{H} \rangle^2\}$ proportionalen Dämpfung
Geringer Einfluß höherer Schalen
Gleiche Ergebnisse wie bei der polykristallinen Mittelung durch eine hohe Zahl nächster Nachbarn
Veränderung der Dämpfungskonstanten durch eine Leerstellen-Sondenkern-Bindungsenergie $E_B>0$
Gute Näherungslösungen durch RPA-Modell
Möglichkeit der analytischen Behandlung des Einflusses einer Nicht-Gleichgewichts-a priori Verteilung
Möglichkeit der analytischen Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Anfangsanisotropie bei äußeren Magnetfeldern.

8. Die differentiellen Störfaktoren $G_{22}(t)$ im quasistatischen Grenzfall

8.1 Der Grenzfall $\nu=0$

Einen wichtigen Grenzfall der allgemeinen Formel für den differentiellen Störfaktor aus Gl. (3.28) erhalten wir, wenn die Sprungfrequenz vernachlässigbar klein gegenüber der maximalen Quadrupolfrequenz ist ($\omega_{max} >> \nu$; ω_{max} im allgemeinen hervorgerufen von einer Leerstelle aus der ersten Schale). Da in einem Leerstellenmodell Frequenzen zwischen $0 \leqslant \omega_o(j) \leqslant \omega_{max}$ auftreten, sind für ein solches Frequenzspektrum alle Bereiche vom stark fluktuierenden $\nu \gg \omega_o(j)$ über einen Übergangsbereich $\nu \approx \omega_o(j)$ bis hin zum quasistatischen Bereich $\nu << \omega_o(j)$ enthalten. Eine Vernachlässigung der Übergangsmatrix W gegenüber der Liouville-Matrix $\mathfrak{L}$ ist im allgemeinen nicht zulässig. Eine Auswertung von Gl. (3.28) ist trotzdem möglich, wenn man das Zeitfenster $t-t_o$ der Messung berücksichtigt. Wir zerlegen das Spektrum der Quadrupolfrequenzen bezüglich eines Wertes von ν in die Bereiche

(1)	$\omega < 2\pi\nu \cdot 10^{-1}$	relaxierender Bereich
(2)	$2\pi\nu \cdot 10^{-1} < \omega < 2\pi\nu \cdot 10^{+1}$	Übergangsbereich
(3)	$2\pi\nu \cdot 10^{+1} < \omega$	quasistatischer Bereich

und unterscheiden, auf welchen Frequenzbereich das Experiment durch die Vorgabe des Zeitfensters $t-t_o$ empfindlich ist. Im Fall (1) sind die Quadrupolperioden $T=2\pi/\omega$ bei geeignet gewähltem ν derart lang, daß wegen der begrenzten Lebensdauer τ_N des Kerns ein Zeitfenster $t-t_o \sim T >> \tau_N$ zu der Messung eines integralen Störfaktors führt. Im Übergangsbereich muß die vollständige Formel (3.28) angewendet werden.

Besonders einfach wird die Auswertung nur im quasistatischen Bereich (3). Das Zeitfenster $t-t_o$ entspreche einigen Perioden $T_{min}=2\pi/\omega_{max}$, der minimalen Wechselwirkungsperiode. In diesem Zeitmaßstab ist der unterschiedliche Einfluß kleiner Frequenzen $\omega<\omega_{max}$, der durch Relaxation oder quasistatische Verteilung entsteht, vernachlässigbar. Ein besonderer Fall ist $\omega=0$, da hier Relaxation und quasistatische Verteilung zum gleichen Ergebnis führen. Unter Berücksichtigung des Zeitfensters $t-t_o \sim T_{min}$ lautet der differentielle Störfaktor für eine polykristalline Probe näherungsweise

$$G_{kk}(t,t_o) = \sum_j G_{kk}^{poly}(\omega_o(j), t-t_o)\, p_j(t_o) \quad , \qquad (8.1)$$

wobei angenommen wurde, daß die a priori Wahrscheinlichkeiten für die n_j Plätze der j-ten Schale gleich sind.

8.2 Vergleich mit einem Experiment

Zur Berechnung von $G_{kk}(t,t_o)$ werden die Frequenzen $\omega_o(j)$ und die Wahrscheinlichkeiten $p_j(t_o)$ benötigt. Wir bestimmen $p_j(t_o)$ im Rahmen unseres Leerstellensprungmodells durch Gl. (5.1) und die zugehörigen Quadrupolfrequenzen durch den Potentialansatz nach Gl. (6.5) für ein polykristallines, kubisch flächenzentriertes Gitter. Die Schalenzahl für drei Leerstellenkonzentrationen c_V=0.10%, 0.25%, 0.50% wurde so groß wie nach Gl. (3.36) möglich gewählt, um ein breites Frequenzspektrum zu erhalten. Für c_V=0.10% konnten maximal 37 Schalen, für c_V=0.25% 15 Schalen und für c_V=0.50% 11 Schalen berücksichtigt werden. Eine Beschränkung auf allgemein 11 Schalen für alle Konzentrationen c_V=0.50% jedoch ändert den zu berechnenden Mittelwert $G_{kk}(t,t_o)$ wegen des Potentialansatzes (6.5) und des gewählten Zeitfensters unwesentlich. Für den berechneten Kernspin I=5/2 (Beispiel ^{111}Cd) lautet der differentielle Störfaktor

$G_{22}^{poly}(\omega_o(j),t)$ für eine polykristalline Probe nach Steffen und Frauenfelder [9]

$$G_{22}^{poly}(\omega_o(j),t) = 0.2 + 0.3714\cos(\omega_o(j)\cdot t) + 0.2857\cos(2\omega_o(j)\,t) + 0.1429\cos(3\omega_o(j)t)\ . \qquad (8.2)$$

Wie aus Abb. 5.2-5.4 ersichtlich ist, muß nicht nur die Lage des Zeitfensters t-t_o bezüglich ω_{max}, sondern auch die Lage des Zeitpunktes t_o bezüglich der Sprungfrequenz ν beachtet werden, d.h. der Ausheilzustand der Umgebung des implantierten Kernspins muß berücksichtigt werden. Befinden wir uns im Übergangsbereich $10^{-2}<\nu t_o<10^{+2}$, so wird ein nach Gl. (1.3) gemittelter Störfaktor beobachtet werden. Für Experimente,wie sie Behar und Steffen [1] und Bernas et al. [2] durchgeführt haben, ist $\nu t_o>>10^{+2}$, so daß für die a priori Wahrscheinlichkeiten $p_j(t_o)=p_j^{eq}$ angenommen werden darf.

Die berechneten differentiellen Störfaktoren $G_{22}(t,eq)=G_{22}(t)$ sind in den Abb. 8.1-8.3 aufgetragen. Das Verhältnis der Bindungsenergie zur Temperatur beträgt in allen Fällen $E_B/T=1/3\cdot10^{-4}$ eV/K, der Kernspin $I=5/2$. Drei Abschirmkonstanten $\lambda=1.6\ a^{-1}$ (Abb. 8.1), $\lambda=2.0\ a^{-1}$ (Abb. 8.2) und $\lambda=2.7\ a^{-1}$ (Abb. 8.3) (a = Gitterkonstante) wurden gewählt, um den Einfluß von Leerstellen aus höheren Schalen deutlich zu machen (zum Vergleich: $\lambda_{TF}(Ag)=0.54\ \text{Å}^{-1}\triangleq 2.25a^{-1}$).Allen Kurven gemeinsam ist ein mittlerer abnehmender Verlauf, dem eine scharfe Frequenz konstanter Amplitude überlagert ist, die von einer Leerstelle aus der ersten Schale hervorgerufen wird. Während die zweite Schale nicht erkennbar ist, erscheint deutlich die dritte wegen des hohen Wertes von p_3^{eq} (vergl. Abb. 5.2-5.4). Höhere Werte des Abschirmfaktors λ verschieben alle Frequenzwerte $\omega_o(j)$ zu kleineren Frequenzen bezüglich $\omega_o(1)$. Der direkte Einfluß der nahen Schalen nimmt immer mehr ab, der der ersten Schale jedoch bleibt unverändert.

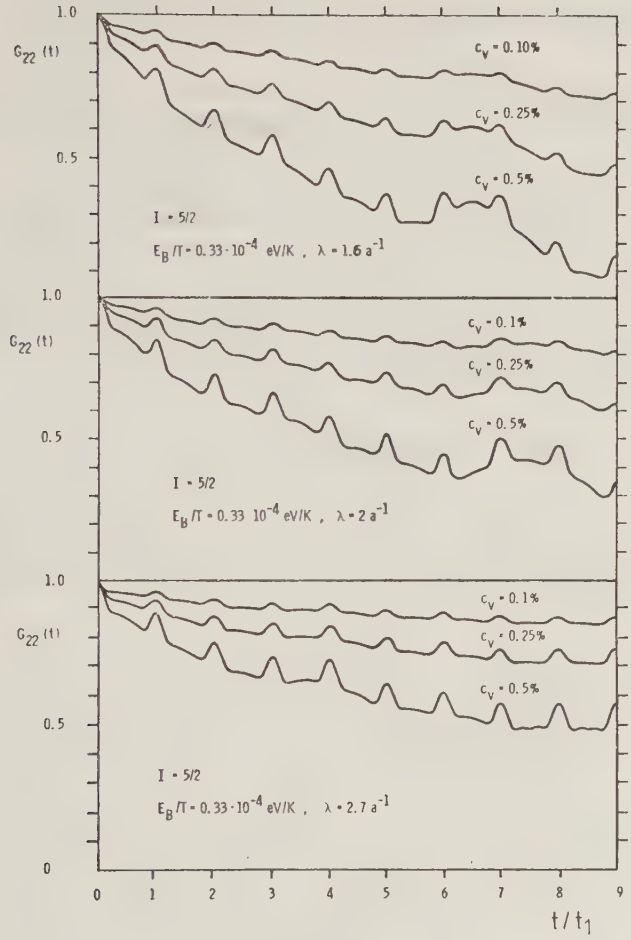


Abb. 8.1, 8.2, 8.3

Differentielle Störfaktoren $G_{22}(t)$ für eine polykristalline k.f.z. Probe im statischen Grenzfall $\nu=0$

I=5/2, a = Gitterkonstante; $t_1 = \frac{40\pi\hbar}{3} \{eQ \cdot V_o(1)\}^{-1}$

Das Verhältnis E_B/T bestimmt die Amplitude von $\omega_0(1)$ (vergl. Abb. 5.2-5.4), gleichzeitig wird der Anteil höherer Schalen verringert.

Die verschiedenen Leerstellenkonzentrationen entsprechen drei Ausheilzuständen der Umgebung des Sondenkerns, also drei Ausheilzeiten bei konstanter Temperatur. Vergleicht man die Abb. 8.1-8.3 mit den experimentellen Kurven von Behar und Steffen [1] (Abb. 8.4) und Bernas et al. [2] (Abb. 8.5), so erkennt man das gleiche prinzipielle Verhalten. Trotzdem kann man daraus nicht schließen, daß die Experimente durch das beschriebene Leerstellenmodell eindeutig erklärt werden. Um diesen Vorbehalt zu verstehen, betrachten wir den verallgemeinerten Mittelwert von (8.1) eines differentiellen Störfaktors

$$G_{kk}(t) = \int d\omega\, f(\omega)\, G_{kk}^{poly}(\omega,t) \quad . \tag{8.3}$$

$f(\omega)$ bedeutet die Verteilungsfunktion der Quadrupolfrequenzen ω. Fällt eine Frequenz ω_1 aus dieser Frequenzverteilung wesentlich heraus, ist die Einführung einer neuen Verteilungsfunktion $f(\omega)$ sinnvoll, so daß

$$G_{kk}(t) = f(\omega_1)\, G^{poly}(\omega_1,t) + (1-f(\omega_1)) \int d\omega\, \tilde{f}(\omega)\, G_{kk}^{poly}(\omega,t)$$

$$\tilde{f}(\omega) = \frac{f(\omega)\,(1-\delta(\omega-\omega_1))}{1-f(\omega_1)} \tag{8.4}$$

umgeschrieben werden kann. Die Auswertung der experimentellen Werte von Behar und Steffen [1] wurde mit einer Normalverteilung $\tilde{f}(\omega)$ mit einem Frequenzmittelwert $\langle\omega\rangle \ll \omega_1$ und einer Breite $\delta\omega \ll \omega_1 - \langle\omega\rangle$ durchgeführt. In dem in-beam-Experiment von Bertschat et al. [3] werden ^{111}Cd-Kerne in ein Pd-Gitter implantiert und der differentielle Störfaktor $G_{22}(t)$ mit einer Lorentzverteilung $\tilde{f}(\omega)$ um $\omega=0$ und einer Breite $\delta\omega \ll \omega_1$ angepaßt. Die in unserem Falle diskrete Verteilung

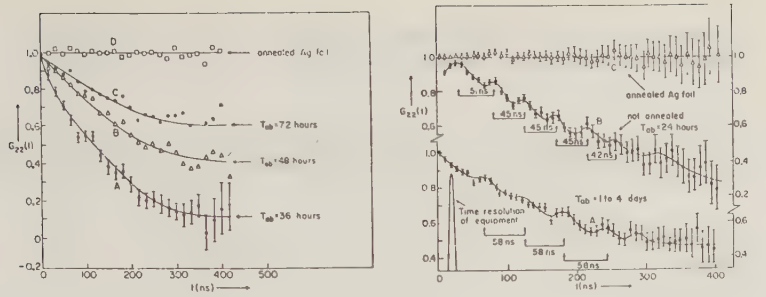


Abb. 8.4 Zeitdifferentielle Störfaktoren $G_{22}(t)$ von ^{111}Cd in einer polykristallinen Silberprobe bei Raumtemperatur für verschiedene Ausheilzeiten T_{ab} nach Ref. [1]

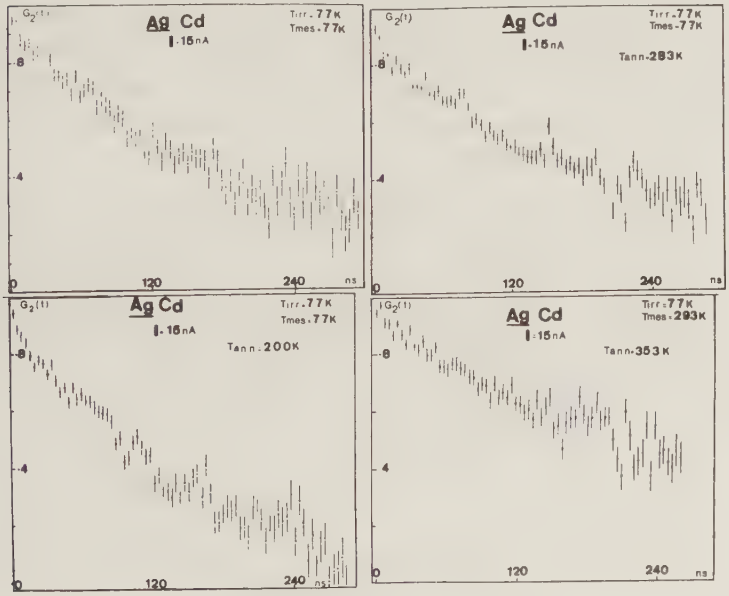


Abb. 8.5 Zeitdifferentielle Störfaktoren $G_{22}(t)$ von ^{111}Cd in einer polykristallinen Silberprobe für verschiedene Ausheiltemperaturen T_{ann} nach Ref. [2] (T_{irr}: Bestrahlungstemperatur, T_{mes}: Meßtemperatur)

$$\tilde{f}(\omega) = \frac{\sum_{j\geq 1} P_j \delta(\omega-\omega_j)}{1-P_1} \qquad (8.5)$$

hat den Mittelwert $<\omega><<\omega_1$ und die Breite $\delta\omega<<\omega_1-<\omega>$ und stimmt darin mit den vorher genannten Verteilungen überein.

Monte-Carlo-Rechnungen zur Bestimmung von Feldgradientenverteilungen, die von statistisch verteilten substitutionellen Störatomen in Gittern erzeugt werden, zeigen einen ähnlichen Verlauf der Verteilungsfunktion. Für ein Punktladungsmodell erhalten Pustowka et al. [63] jedoch keine klare Trennung von $f(\omega_1)$ bezüglich aller anderen Frequenzen wegen der zu hohen Konzentration der Störatome. Es fehlt in den Kurven für den differentiellen Störfaktor die überlagerte scharfe Frequenz ω_1. Wird ein Feldgradientenansatz nach Friedel Gl. (6.5) verwendet, kann durch eine geeignete Phasenwahl eine Frequenz aus den benachbarten herausgehoben werden (Bozek et al. [64]). Die Folge ist ein phasenabhängiges Auftreten einer scharfen Frequenz in $G_{kk}(t)$ (Bozek et al. [65]).

Die Beispiele zeigen, daß aus einer einzigen Kurve eines differentiellen Störfaktors nicht auf die Frequenzverteilung $f(\omega)$ und schon gar nicht auf die Gültigkeit eines bestimmten Feldgradientenansatzes geschlossen werden darf. Unsere Rechnungen deuten jedoch darauf hin, daß das Potential, hervorgerufen durch Ladungsstörungen im Gitter, langreichweitiger als ein Thomas-Fermipotential ist. Ein Potentialansatz nach Friedel beschreibt den Fernbereich in richtiger Weise, während in nächster Nachbarschaft des Sondenkerns zu geringe Feldgradienten berechnet werden. Die Phase des Friedelansatzes wird durch den langreichweitigen Streuanteil gegeben. Sie darf nicht dadurch bestimmt werden, daß eine Anpassung der theoretischen Kurven mit den experimentell gemessenen Störfak-

toren gerade in einem Frequenzbereich durchgeführt wird, der die nahe Umgebung des Kernes beschreibt.

Der Ausheilzustand der Umgebung wird durch die Verteilung $f(\omega)$ angegeben, die sich für lange Zeiten im Idealfall (vollständige Ausheilung) wie

$$\lim_{t\to\infty} f(\omega) = \delta(\omega) \qquad (8.6)$$

verhält. Ausheilung von Gitterstörungen wird in unserem Modell wie bei Behar und Steffen [1] durch die Veränderung $\langle\omega\rangle\to 0$ bei gleichzeitigem $\delta\omega\to 0$ beschrieben. Bertschat et al. [3] verwenden $\delta\omega\to 0$, da $\langle\omega\rangle = 0$ in der Lorentzverteilung angenommen wurde. Thermisch aktivierte Gitterstörungen verhindern den δ-förmigen Grenzfall. Die zugehörigen Konzentrationen sind gering (Damask und Dienes [4]), so daß der differentielle Störfaktor unempfindlich auf sie ist.

Interessant wäre es, das Zeitfenster $t-t_0$ so groß zu machen, daß auch höhere Schalen aufgelöst werden können (vergl. Abb. 8.1 und 8.2). Dazu ist eine sehr gute Zählstatistik für lange Zeiten nötig, die experimentell sehr schwierig zu erreichen ist. Mit den vorliegenden experimentellen Ergebnissen ist eine Auswertung noch nicht möglich. Ebenso wären weitere Messungen von $G_{kk'}^{qq'}(t)$ an ähnlichen Systemen äußerst nützlich. Eine mögliche Meßmethode hierfür ist die β-γ-zeitdifferentielle gestörte Winkelverteilung (Coussement und Mitarbeiter [66]).

9. Zusammenfassung

Untersuchungsziel ist der Einfluß der durch Leerstellendiffusion verursachten zeitlich veränderlichen Quadrupolwechselwirkung mit einem angeregten Sondenkern auf die Winkelverteilung der emittierten γ-Strahlung. Mit der Leerstellendiffusion verknüpft sind Fluktuationen des elektrischen Feldgradienten in Größe und Richtung, die den stochastischen Mittelwert des Evolutionsoperators bestimmen. Mit der Annahme eines homogenen Markoffprozesses für die Leerstellendiffusion können die Störfaktoren, die sich als Matrixelemente des Evolutionsoperators in einer Multipoloperatorenbasis ergeben, als Lösung von einfachen Matrixgleichungen berechnet werden. Mit der Einführung eines Umgebungsvektors erhalten die Matrizen endliche Dimension, ohne daß die Lösung instabil wird. Eine weitere Matrixdimensionsreduzierung gelingt für einen speziellen Ansatz der Ladungsdichteänderung um eine Leerstelle. Eine numerische Auswertung der Matrixgleichungen ist jedoch wegen der weiterhin hohen Dimension der Matrizen in der vollständigen Form nicht möglich. Es werden Näherungslösungen entwickelt und ihre Gültigkeit untersucht.

Die für die Mittelung des Evolutionsoperators wichtigen a priori Wahrscheinlichkeiten für die Lage der Leerstelle zum Zeitpunkt der Anregung des Sondenkerns werden besonders behandelt. Die Ergebnisse zeigen, daß eine Mittelung für eine Umgebung des Sondenkerns nur durchführbar ist, wenn sich die Leerstellenverteilung um den Sondenkern mittels eines Diffusionsprozesses in eine Gleichgewichtsverteilung entwickelt hat. Andernfalls sind zusätzliche Informationen über den Implantationsprozeß nötig. Es werden die Zeitskala und die Parameter diskutiert, die den Übergang zu der Gleichgewichtsverteilung bestimmen.

Das entwickelte Modell wird angewendet auf drei verschiedene Gittertypen, das kubisch raumzentrierte, kubisch flächenzentrierte und das ebene hexagonale Gitter. Gezeigt wird, wie eine

Veränderung der Leerstellen-Sondenkernbindung, der Abschirmung der Leerstellenladung, der Leerstellensprungfrequenz und der Kernlebensdauer sich in den Störfaktoren bemerkbar macht. Gittertypische Feldgradienten werden am hexagonalen Gitter, externe Magnetfelder am kubisch flächenzentrierten Gitter diskutiert. Ein Vergleich von Näherungslösungen von verschiedenen Kernspinwerten mit exakten Lösungen macht deutlich, wie die Störfaktoren höherer Kernspinwerte berechnet werden können.

Am Beispiel des kubisch raumzentrierten Gitters wird der Einfluß der diskreten Struktur des Gitters diskutiert. Eine Zerlegung der fluktuierenden Wechselwirkung in Größe und Richtung zeigt, daß beide Anteile zu Dämpfungen im Störfaktor führen. Die Anwendung von Modellen, die entweder die Größe oder die Richtungsfluktuation behandeln, ist auf Grenzbereiche der Relaxation beschränkt und führt sonst zu falschen Ergebnissen.

Ein Vergleich der berechneten Werte mit experimentellen Ergebnissen wird für die Fälle schnell diffundierender Leerstellen und quasistatischer Leerstellenverteilung durchgeführt. Es ergibt sich, daß die Störfaktoren im ersten Fall hauptsächlich durch die Fluktuation von Leerstellen in nächster Nachbarschaft des Sondenkerns und durch Nicht-Gleichgewichts- a priori Wahrscheinlichkeiten bestimmt sind. Für den quasistatischen Grenzfall müssen weiter entfernte Leerstellenlagen und eine Gleichgewichtsverteilung der Leerstellen berücksichtigt werden. In beiden Fällen wird eine gute qualitative Übereinstimmung mit den Experimenten erzielt.

10. Anhang

Darstellung der bedingten Wahrscheinlichkeiten $P(\vec{r}_{j\alpha}(t)|\vec{r}_{1\beta}(0))$ durch Fourierintegrale

Eine andere mögliche Darstellung eines markoffschen Diffusionsprozesses außer in der von uns verwendeten Matrixschreibweise bietet sich an, wenn die bedingte Wahrscheinlichkeit $P(\vec{r}_{j\alpha}(t)|\vec{r}_{1\beta}(0))$ unabhängig von der Lage des Startpunktes $\vec{r}_{1\beta}$ und nur abhängig von der Differenz $\vec{R}=\vec{r}_{j\alpha}-\vec{r}_{1\beta}$ ist. Die Matrixschreibweise ist wegen ihres Bezuges auf ein festes Koordinatensystem mit dem Sondenkern als Ursprung hier ungünstig. Die der Matrix-Gleichung (3.8b) äquivalente integrale Darstellung lautet:

$$P_n(\vec{r}|\vec{0}) = \int d\vec{k}^3 \, e^{+i\vec{k}\cdot\vec{r}} \, P_1^n(\vec{k}) \qquad \text{(A1a)}$$

$$P_1(\vec{k}) = \int d^3r \, e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}} \, P_1(\vec{r}|0) \quad , \qquad \text{(A1b)}$$

so daß (3.1) für ein Gittermodell in die zu (3.8a) analoge Form

$$P(\vec{r}_{j\alpha}(t)|\vec{0}(0)) = \int d^3k \, e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}_{j\alpha}} \, e^{-\nu t(P_1(\vec{k})-1)} \qquad \text{(A2a)}$$

mit

$$P_1(\vec{k}) = \frac{1}{z}\sum_{\alpha}^{z} e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}_{1\alpha}} \qquad \text{(A2b)}$$

übergeht, wobei bei der Berechnung von $P_1(\vec{k})$ wie in (3.10) nur Sprünge zu nächsten Nachbarn angenommen werden. Ihre Fouriertransformierte

$$P(\vec{r}_{j\alpha},\omega) = \int d\vec{k}^3 \, e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}_{j\alpha}} \, \frac{\nu(P_1(\vec{k})-1)}{\nu^2(P_1(\vec{k})-1)^2+\omega^2} \qquad \text{(A3)}$$

verwendet Sholl [19] zur Berechnung der Sprunggitterrelaxationszeiten bei Dipol-Dipol Wechselwirkung, und Knauer [17] und Dattagupta [18] zur Berechnung der Mößbauerlinienverbreiterung durch die diffusive Bewegung des Mößbauer-Atoms. Das ist deshalb möglich, weil der Koordinatenursprung in diesen Fällen nach jedem Sprung neu festgelegt werden kann (Translationsinvarianz). Anders bei dem Leerstellensprungmodell von Cavelius [20]. Hier jedoch trägt insbesondere die Fluktuation in weiterer Entfernung von der Sonde wesentlich zum Mittelwert bei auf Grund der Wahl des Potentials (Gl. 6.5), wo freie Leerstellendiffusion angenommen werden kann. Die Leerstellenwanderung in der Nähe der Sonde wird nicht korrekt behandelt. Der Vorteil der Darstellungen (A1) und (A2) liegt darin, daß sich die auftretenden Integrale u.U. leichter als Summationen analytisch auswerten lassen.

11. Literaturverzeichnis

1 BEHAR M. and STEFFEN R.M.:
Phys. Rev. Lett. 29, 116 (1972)
Phys. Rev. C7, 788 (1973)

2 BERNAS H., THOME L. and SAGE F.:
Contributed paper to Int. Meeting on Hpyerfine Interactions (Leuven 1975) VIII.4, 128
BERNAS H.:
Physica Scripta 11, 167 (1975)

3 BERTSCHAT H., HAAS H., PLEITER F., RECKNAGEL E., SCHLODDER E. and SPELLMEYER B.:
Phys. Rev. B12, 1 (1975)

4 DAMASK A.C. and DIENES G.J.:
"Point Defects in Metals" New York 1963, Gordon + Breach

5 BOSSE J. and GABRIEL H.:
Z. Physik 266, 283 (1974)

6 GABRIEL H. and BOSSE J.:
Proceedings of the Int. Conf. on Angular Correlations in Nuclear Disintegration, p. 394. Delft, 1970. Groningen: Rotterdam U.P. 1974

7 GABRIEL H.:
Phys. Rev. 181, 506 (1968)

8 MESSIAH A.:
"Quantum Mechanics", p. 334, Amsterdam 1961, North-Holland

9 GANTMACHER F.R.:
"Matrizenrechnung I", Berlin 1958, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften

10 STEFFEN R.M. and FRÄUENFELDER H.:
"Perturbed Angular Correlations" suppl. by Proceedings of The Uppsala Meeting on "Extranuclear Perturbations in Angular Correlations" 1963. Amsterdam 1964, North-Holland

11 THOMPSON M.W.:
"Defects and Radiation Damage in Metals", Cambridge University Press 1969

12 FISZ M.:
"Wahrscheinlichkeitsrechnung und mathematische Statistik" VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1962

13 BELLMAN R.:
"Introduction to Matrix Analysis" 1970, McGraw-Hill

14 MANNING J.R.:
"Diffusion Kinetics for Atoms in Crystals" 1968, D. Van Nostrand Comp.

15 BLUME M.:
Phys. Rev. 174, 351 (1968)

16 WINKLER H.:
Dissertation 1973, Universität Hamburg

17 KNAUER R.C.:
Phys. Rev. B3, 567 (1971)

18 DATTAGUPTA S.:
Phys. Rev. B12, 47 (1975)

19 SHOLL C.A.:
J. Phys. F.: Metal Phys. 4, 1556 (1974)

20 CAVELIUS E.:
Phys. stat. sol. (b) 66, 321 (1974)

21 ANDERSON P.W.:
J. Phys. Soc. Japan 9, 316 (1954)

22 KUBO R.:
Rep. Prog. Phys. 29, Part I, 255 (1966)

23 DATTAGUPTA S. and BLUME M.:
Phys. Rev. B10, 4540 (1974)

24 BLUME M.:
Nuclear Physics A167, 81 (1971)
SCHERER C.:
Nuclear Physics A157, 81 (1970)

25 WINKLER H. and GERDAU E.:
Z. Physik 262, 363 (1973)

26 GERDAU E., WINKLER H., GIESE B., GEBERT W., and BRAUNSFURTH J.:
wird veröffentlicht
Vorbericht: Beiträge zum Kolloquium in Ebermannstadt 1974, p. 32

27 BOSCH F. and SPEHL H.:
Z. Physik 253, 257 (1972)
Z. Physik 268, 268 (1974)

28 ABRAGAM A. and POUND R.V.:
Phys. Rev. 92, 943 (1953)

29 KOIWA M.:
Crystal Lattice Defects 4, 65 (1973)

30 ABROMEIT C. and GABRIEL H.:
Contributed paper to Int. Conf. on Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Uppsala II.12, 48 (1974)

31 KOIWA M. and McEWEN S.R.:
Phil. Mag. 26, 173 (1972)

32 STERNHEIMER R.M.:
Phys. Rev. 146, 140 (1966)
Phys. Rev. 159, 266 (1967)

33 DE WETTE F.W.:
Phys. Rev. 123, 103 (1961)

34 LODGE K.W. and SHOLL C.A.:
J. Phys. F.: Metal Phys. 4, 2073 (1974)

35 MOTT N.F.:
Proc. Camb. Phil. Soc. 32, 281 (1936)

36 LANGER J.S. and VOSKO S.H.:
J. Phys. Chem. Solids 12, 196 (1959)

37 FRIEDEL J.:
Phil. Mag. 43, 153 (1952)

38 KOHN W. and VOSKO S.H.:
Phys. Rev. 119, 912 (1960)

39 HURD C.M. and GORDON E.M.:
J. Phys. Chem. Sol. 29, 2205 (1968)

40 MEYER A., STOCKS G.M. and YOUNG W.H.:
J. Phys. F.: Metal Phys. 3, 1381 (1973)

41 FLYNN C.P. and ODLE R.L.:
Proc. Phys. Soc. 81, 412 (1963)

42 ADAWI I.:
Phys. Rev. 146, 379 (1966)

43 MARCH N.H. and MURRAY A.M.:
Proc. Roy. Soc. Lond. A256, 400 (1960)

44 STOTT M.J., BARANOVSKY S. and MARCH N.H.:
Proc. Roy. Soc. Lond. A316, 201 (1970)

45 ROBINSON G.G. and De CHATEL P.F.:
J. Phys. F.: Metal Phys. 5, 1502 (1975)

46 RASOLT M. and TAYLOR R.:
Phys. Rev. B11, 2717 (1975)

47 DAGENS L., RASOLT M. and TAYLOR R.:
Phys. Rev. B11, 2726 (1975)

48 ALFRED L.C.R. and VAN OSTENBURG D.O.:
Phys. Rev. 185, 1040 (1969)

49 ROWLAND T.J.:
Phys. Rev. 119, 900 (1960)

50 JENSEN B.L., NEVALD R. and WILLIAMS D.LL.:
J. Phys. F.: Métal Phys. 2, 169 (1972)

51 SCHNAKENBERG Jr. G. and SCHUMACHER R.T.:
Phys. Rev. B7, 2292 (1973)

52 NEVALD R., JENSEN B.L. and FYNBO P.B.:
J. Phys. F.: Metal Phys. 4, 1320 (1974)

53 NEVALD R. and PETERSEN G.:
J. Phys. F.: Metal Phys. 5, 1778 (1975)

54 BEAL-MONOD M.T. and KOHN W.:
J. Phys. Chem. Sol. 29, 1877 (1968)

55 BLATT F.J.:
Phys. Rev. 108, 285 (1957)

56 KANERT O. and MEHRING M.:
"NMR-Grundlagen und Fortschritte", eds. P.Diehl et al., Vol.3, Springer-Verlag (1971)

57 EBERLEIN P.J.:
Numer. Math. 14, 232 (1970)

58 SEEHUSEN J.:
Diplomarbeit 1971, Freie Universität Berlin, unveröffentlicht

59 HEMPEL G., HEUBES P., INGWERSEN H., JOHANN H.G., KLINGER W., LOEFFLER W., SANDNER W., SCHATZ G., and WITTHUHN W.:
Contributed paper to the Int. Conf. on Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Uppsala II.14, 52 (1974)
Beiträge zum Kolloquium in Ebermannstadt 1974, p.9

60 INGWERSEN H., JOHANN H.G., KLINGER W., LOEFFLER W., SANDNER W., and WITTHUHN W.:
Contributed paper to the Int. Conf. on Hyperfine Interactions (Leuven 1975) VIII.2, 124

61 SCHATZ G., RAFAILOVICH M.H., and SPROUSE G.D.:
Contributed paper to the Int. Conf. on Hyperfine Interactions (Leuven 1975) VIII.3, 126

62 HAAS H.:
Physica Scripta 11, 221 (1975)

RECKNAGEL E.:
Physica Scripta 11, 208 (1975)

63 PUSTOWKA A.J., SAWICKA B.D. and SAWICKI J.A.:
Phys. stat. sol. (b) 57, 783 (1973)

64 BOZEK E., GOLCZEWSKI J. and KAJFOSZ J.:
Contributed paper to the Int. Conf. on Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Uppsala IV.42, 226 (1974)

65 BOZEK E., GOLCZEWSKI J., INGARDEN-DUTKIEWICZ B., KAJFOSZ J., LACH M., and WODNIECKI P.:
Contributed paper to the Int. Conf. on Hyperfine Interactions Studied in Nuclear Reactions and Decay, Uppsala IV.43, 228 (1974)

66 ROTS M., NAMAVAR F. and COUSSEMENT R.:
Phys. Rev. Lett. 34, 1099 (1975)

Diese Arbeit wurde am Institut für Atom- und Festkörperphysik (WE 1A) des Fachbereichs Physik der Freien Universität Berlin durchgeführt.

Herrn Prof. Dr. H. Gabriel danke ich für die Anregung zu dieser Arbeit und die ständige Förderung durch zahlreiche Diskussionen und viele wertvolle Ratschläge.

Für die stets gute Zusammenarbeit und Bereitschaft zu Diskussionen danke ich allen Mitarbeitern der Theoriegruppe.

Diese Arbeit wurde 1972 und 1973 vom Bundsministerium für Technologie finanziell unterstützt.

LEBENSLAUF

Name:	Christian Abromeit
Geburtsdatum:	31.Mai 1943
Geburtsort:	Bergen auf Rügen
Eltern:	Rechtsanwalt und Notar Kurt Abromeit und Frau Ilse, geb. Hopf
Heirat:	6.8.1971 mit der Med. Techn. Assistentin Gunhild Christ
Kinder:	Nils *12.5.1972, Lars *26.11.1974

April 1950 bis März 1954	Besuch der Volksschule in Braunschweig
April 1954 bis März 1963	Besuch des Neusprachlich- und mathematisch-naturwissenschaftlichen Gymnasiums für Jungen Martino-Katharineum in Braunschweig
28.2.1963	Reifeprüfung
April 1963 bis März 1965	Wehrdienst bei der Bundeswehr als Zeitsoldat
April 1965 bis Juli 1971	Studium an der Technischen Universität Carolo-Wilhelmina zu Braunschweig im Fach Physik
19.10.1967	Diplom Vorprüfung
Sept. 1969 bis Juli 1971	Diplomarbeit ("Einfluß einer Plasmasonde mit Aperturfeld auf die Teilchendichtemessungen im solaren Wind")
22.7.1971	Diplomhauptprüfung
August 1971 bis Dez. 1971	Gastwissenschaftler an der WE 1A des Fachbereichs Physik der Freien Universität Berlin
Jan. 1972 bis Dez. 1973	Wissenschaftlicher Angestellter an der gleichen WE
seit Jan. 1974	Wissenschaftlicher Assistent an der gleichen WE

B. Ladewig - Dissertationsdruck - 1 Berlin 12 - Pestalozzistraße 106
Tel.: 3128885 - 3138198